

L'ETUDE DES PROPRIETES ELECTRONIQUES DES METAUX PAR ANNIHILATION DE POSITRONS

THESE

présentée à la Faculté des Sciences
de l'Université de Genève
pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences
mention physique

par
Alfred A. MANUEL
de Rolle (Vaud)

Thèse No. 1889



Juris Druck + Verlag Zurich

1978

L'ETUDE DES PROPRIETES ELECTRONIQUES DES METAUX PAR ANNIHILATION DE POSITRONS

THESE

présentée à la Faculté des Sciences
de l'Université de Genève
pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences
mention physique

par
Alfred A. MANUEL
de Rolle (Vaud)

Thèse No. 1889



Juris Druck + Verlag Zurich
1978

La faculté des sciences, sur préavis de Messieurs
Ø. FISCHER, professeur ordinaire et M. PETER, professeur
ordinaire (Département de physique de la matière con-
densée) codirecteurs de thèse et A. JEAVONS, docteur
ès sciences (C.E.R.N. - Genève), autorise l'impression
de la présente thèse, sans exprimer d'opinion sur les
propositions qui y sont énoncées.

GENEVE, le 19 octobre 1978

Le doyen:

Bernard LEVRAT

Thèse No 1889.



A Chantal, Elise, Caroline, Evelyne ...

... Amour, Sourire, Tendresse, Liberté,

Merci.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

TABLE DES MATIERES

Introduction	2
Chapitre 1 : <u>L'annihilation de positrons dans un métal</u>	
Introduction	6
1.1 La thermalisation du positron	7
A. approximation RPA	8
B. interaction positron-phonon	10
1.2 Le processus d'annihilation	13
1.3 L'annihilation à émission de 2γ	14
1.4 La distribution d'impulsion des paires de photons	17
1.5 Les interactions positron-électrons	19
Chapitre 2 : <u>La description du système de mesure</u>	
Introduction	21
2.1 Les chambres à fils et les convertisseurs	22
A. Le convertisseur à haute densité	23
B. La chambre à fil	25
- principe	25
- réalisation	26
2.2 L'électronique de sélection d'événement	28
A. Les amplificateurs	28
B. L'électronique de logique	30
2.3 L'acquisition des données	32
A. Le matériel	32
B. La logiciel	35
2.4 L'algorithme de traitement des événements	38
Chapitre 3 : <u>Cryogénie et cristallogenèse</u>	
Introduction	40
3.1 La cryogénie	40
3.2 La cristallogenèse	42
A. L'aluminium et le cuivre	42
B. Le composé intermétallique V_3Si	43
C. Préparation des échantillons	44
Chapitre 4 : <u>Paramètres expérimentaux</u>	
Introduction	45
4.1 Le bruit de fond dans les distributions de corrélations angulaires	46

4.2 Les résolutions spatiales et angulaires	51
4.3 L'efficacité angulaire	56
4.4 Les histogrammes redondants	58
Chapitre 5 : <u>L'annihilation de positrons dans l'aluminium</u>	
Introduction	59
5.1 L'aluminium	60
5.2 La mesure	61
5.3 Analyse et discussion	62
A. Etude des dérivées	62
B. Comparaison de la mesure avec un modèle simple	63
Chapitre 6 : <u>L'annihilation de positrons dans le cuivre</u>	
Introduction	68
6.1 Le cuivre	69
6.2 Les mesures	74
6.3 Analyse et discussion	74
A. Comparaison avec les résultats de Haas van Alphen	
B. La dimension des trous	77
C. Les composantes de grande quantité de mouvement	79
D. Les électrons de cœur	81
E. Les corrélations électrons-positron	86
Chapitre 7 : <u>L'annihilation de positrons dans le V₃Si</u>	
Introduction	88
7.1 Le composé intermétallique V ₃ Si	89
7.2 La mesure	92
7.3 Analyse et discussion	93
Conclusions	99
Remerciements	100
Références	102

Préambule

Le positron ... Une particule d'anti-matière, fruit de la relaxation d'un noyau excité ...; l'image absolue de l'électron dans le miroir fictif de notre univers matériel.

Le cristal ... Pour André Breton (L'amour fou) : la référence, l'étalon de l'oeuvre d'art : "Nul plus haut enseignement artistique ne me paraît devoir être reçu que du cristal. L'oeuvre d'art (...) me paraît dénuée de valeur si elle ne présente pas la dureté, la rigidité, la régularité, le lustre sous toutes ses surfaces extérieures et intérieures, du cristal".

Le positron : agent de désordre, de destruction (annihilation !).

Le cristal : symbole d'ordre, de pérennité spatiale, de clarté.

Que peut-il advenir de la rencontre de ces deux éléments fondamentalement hostiles et incompatibles ? Que peut apporter l'observation du bref "voyage" suicidaire d'un positron dans un cristal ?

Introduction

Lorsqu'il étudie l'annihilation des positrons dans les métaux, le physicien s'attache à l'évolution de deux observables:

1. Le temps de vie du positron, un temps qui est extrêmement bref puisque inférieur à 10^{-11} sec.

2. les fruits de l'annihilation, la nature régissant les lois de cet événement destructeur par trois principes de conservation très simples : conservation de la charge électrique, de la quantité de mouvement et de l'énergie.

La mesure des temps de vie, qui se fait avec une précision toujours plus grande (on atteint aujourd'hui des résolutions temporelles de 10^{-11} sec !), permet d'obtenir des informations, notamment sur les défauts structuraux dans les solides et sur leur dépendance en fonction de paramètres aussi divers que les déformations mécaniques, les traitements thermiques ou encore l'irradiation par des particules élémentaires. La maîtrise de tout ces paramètres est, comme on en juge à leur énumération, de première importance dans la technologie des matériaux. Les positrons offrent là un moyen d'investigation très utile et largement utilisé.

L'observation des caractéristiques de l'annihilation fournit, quant à elle, des renseignements utiles dans bien des domaines. En médecine notamment, où elle offre un outil de diagnostic dont l'avenir est prometteur. En physique, elle fournit des renseignements sur l'état des électrons annihilés et sur leur voisinage immédiat. Il s'agit, dans cette branche, d'une méthode d'investigation des propriétés électroniques des matériaux qui, appliquée à l'étude des métaux et de leurs composés, permet d'obtenir des renseignements sur la topologie de la surface de Fermi, donc sur les structures de bande.

L'annihilation d'un positron avec un électron du matériau résulte principalement en l'émission de deux rayons gamma qui se propagent presque antiparallèlement, de façon à conserver la quantité de mouvement de la paire annihilée. Chaque gamma a une énergie de 511 keV (énergie de masse de l'électron ou du positron) de façon à conserver l'énergie.

La distribution de la quantité de mouvement du centre de masse des paires annihilées peut être mesurée de deux façons différentes :

Premièrement en mesurant l'effet Doppler sur la fréquence d'un gamma. On mesure l'écart de fréquence $\nu - \nu_0$ d'un photon émis par une paire qui s'annihile en étant animée d'une vitesse par rapport à un photon de fréquence ν_0 provenant d'une paire annihilée au repos. Cette dispersion en fréquence donne une mesure de la quantité de mouvement dans la direction de propagation des photons. Ces écarts de fréquence sont petits et

les détecteurs à semi-conducteur tels que le Ge (Li) n'offrent pas une résolution suffisante pour fournir des résultats précis, cela malgré les techniques de déconvolution qui sont basées sur l'analyse de Fourier des spectres mesurés. Cette méthode de mesure par effet Doppler a néanmoins l'avantage d'offrir un taux d'événements élevé. Elle est appliquée avec succès notamment dans l'étude des transitions de phase.

La technique des corrélations angulaires est la deuxième méthode de mesure de la distribution de la quantité de mouvement des paires annihilées. Il s'agit là de mesurer la petite déviation par rapport à 180° (typiquement quelques milliradians) qui existe entre les directions de propagation respectives des deux gamma issus de l'annihilation. Cette observable fournit une mesure de la quantité de mouvement de la paire dans la direction perpendiculaire à celle de la propagation des gamma. La résolution que l'on peut atteindre dans cette mesure n'est, en principe, pas limitée : il suffit de placer les détecteurs suffisamment loin du lieu de l'annihilation.

Traditionnellement une telle mesure était effectuée à l'aide de deux compteurs au iodure de sodium dopé (Na I (Tl)), collimatés par de fines fentes réalisées dans un blindage de plomb et placées rigoureusement parallèles. Une des fentes est déplacée transversalement de façon à balayer le domaine d'angle de la mesure et le taux de comptage est relevé en fonction de l'angle que soutendent les fentes. Si les fentes sont bien parallèles, elles sélectionnent toutes les paires de gamma ayant une même composante d'angle (disons θ_x), cette composante étant proportionnelle à la composante p_x de la quantité de mouvement :

$$p_x = mc\theta_x$$

où m est la masse au repos de l'électron
et c la vitesse de la lumière.

Supposons que la distribution des états électroniques dans l'espace de phase soit une sphère (modèle des électrons libres) de rayons P_F . Le taux de comptage N , à un angle θ_x donné, sera proportionnel à la section de la sphère dans le plan yz , pratiquée à l'abscisse p_x (voir figure I-1, A) :

On voit aisément que dans ce cas le taux de comptage est donné par

$$N(\theta_x) \div P_F^2 - p_x^2$$

qui est une parabole renversée coupant l'abscisse à $P_F = mc\theta_F$ (voir figure I.2, A).

Si l'on est à même de déterminer simultanément deux composantes angulaires (θ_x, θ_y) dans la déviation des rayons gamma par rapport à la ligne droite, les états électroniques sélectionnés par ce point de mesure formeront alors comme le montre la figure I-1, B, la corde dans la sphère de Fermi

(nous considérons toujours le modèle des électrons libres), corde parallèle à p_z et définie par (p_x, p_y) . Dans ce cas, le taux de comptage N sera donné par p_x, p_y

$$N(\theta_x, \theta_y) \propto \sqrt{p_F^2 - p_x^2 - p_y^2}$$

où p_x est relié à θ_x comme précédemment et où $p_y = m\theta_y$.

Cette distribution a l'allure d'une demi-sphère comme le montre la figure I-2, B. Cette distribution met en évidence la quantité d'information potentiellement supérieure fournie par une mesure des corrélations angulaires bi-dimensionnelle.

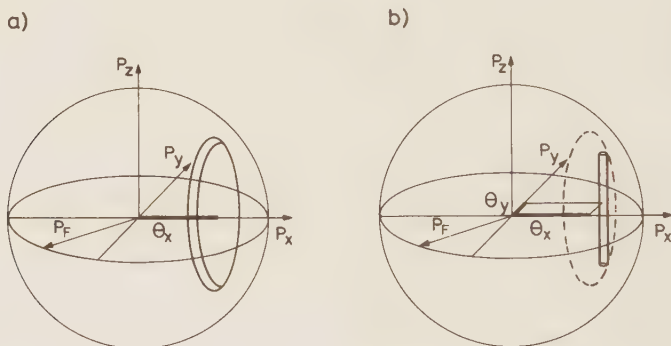


Figure I-1 : Représentation schématique des états électroniques sélectionnés par un point de mesure.

- a) mesure unidimensionnelle
- b) mesure bidimensionnelle

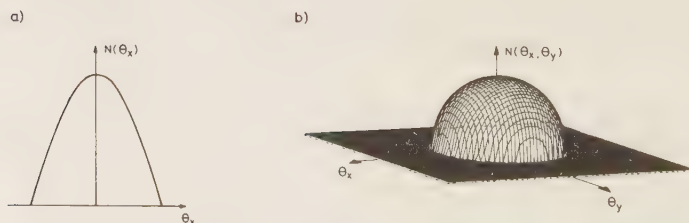


Figure I-2 : Distribution des corrélations angulaires

- a) mesure unidimensionnelle $N(\theta_x)$
- b) mesure bidimensionnelle $N(\theta_x, \theta_y)$

Comment situer l'annihilation de positrons parmi les autres méthodes de mesure des propriétés électroniques des matériaux ? Disons d'emblée que les méthodes qui fournissent des renseignements directs sur la surface de Fermi sont en petit nombre. Pour les métaux purs et les alliages dilués, on peut dire que l'annihilation de positron, à son stade de développement actuel, n'est pas aussi précise que les méthodes basées sur le résonnement cyclotronique (effet de Haas van Alphen, Shubnikov-de Haas, etc ...). Par contre, pour les alliages métalliques non dilués, dans lesquels le libre parcours moyen des électrons de conduction est très petit, l'annihilation de positrons est aujourd'hui la méthode la plus appropriée. Or dans ce domaine, le champ d'investigation est vaste. Elle restera de nombreuses années encore.

Alan Jeavons, au CERN, a conçu des chambres proportionnelles de haute densité qui ont l'avantage de permettre la détection du rayonnement gamma aux moyennes énergies (100 KeV à 1 MeV) avec une efficacité raisonnable (15 % à 0,5 MeV) et de fournir une information bi-dimensionnelle avec une très bonne résolution spatiale (inférieure à 2mm).

Le travail que nous rapportons ici a consisté premièrement à assister Alan Jeavons dans la réalisation et la mise au point des détecteurs et deuxièmement à développer, tester et utiliser un système expérimental permettant d'effectuer des mesures de corrélation angulaire bi-dimensionnelles de la radiation d'annihilation du positron dans les métaux.

Nous décrivons dans le premier chapitre l'annihilation du positron dans un métal. Le chapitre 2 présente le système de mesure qui a été construit. Le chapitre 3 est consacré à la cryogénie et à la cristallogenèse des échantillons sur lesquels nous avons effectué des mesures. Le quatrième chapitre est consacré à une discussion des divers paramètres expérimentaux dont la maîtrise est indispensable pour interpréter correctement les mesures. Les chapitres suivants présentent et discutent les résultats obtenus 1. pour l'aluminium dont les électrons de conduction sont quasiment libres et ont une distribution dans l'espace de phase assez voisine de celle envisagée ci-dessus, 2. pour le cuivre dont la surface de Fermi, qui est bien connue, est clairement mise en évidence par les mesures effectuées et 3. pour le composé inter-métallique V_3Si dont les propriétés supraconductrices laissent à penser qu'il a une surface de Fermi caractérisée par des portions planes.

Chapitre 1

L'ANNIHILATION DE POSITRONS DANS UN METAL

Introduction

Dans ce chapitre, nous voulons retracer chronologiquement l'histoire de l'annihilation d'un positron, issu d'une source radioactive et qui pénètre dans un métal.

Dans la section 1, nous traiterons de la perte d'énergie du positron au contact du métal en envisageant son interaction avec les électrons et les phonons. Nous examinerons le processus d'annihilation dans la section 2. La section 3 sera consacrée à l'annihilation par émission de deux rayons gamma. La section 4 traitera de la distribution d'impulsion des paires de photons dans l'hypothèse des particules indépendantes et nous examinerons dans la section 5 les effets des interactions entre particules sur la distribution d'impulsion des paires.

1.1 La thermalisation du positron dans un solide

Les positrons émis par les sources radioactives β^+ ont une énergie cinétique moyenne assez importante : 540 keV pour le ^{22}Na , 485 keV pour le ^{58}Co et 656 keV pour le ^{64}Cu . La mesure des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation du positron repose entièrement sur le fait que celui-ci possède une énergie cinétique négligeable par rapport à celle de l'électron avec lequel il s'annihile. Avant même d'envisager le processus d'annihilation, il faut donc se demander si l'impulsion du positron ne va pas masquer totalement la mesure que l'on désire effectuer. Autrement dit, la question que l'on doit se poser est celle-ci : est-ce que le temps de vie d'un positron ($\sim 10^{-10}$ sec) est supérieur au temps qu'il lui faut pour perdre son énergie cinétique et donc se thermaliser.

Avant de présenter les calculs de thermalisation qui ont été effectués, citons l'analyse expérimentale de ce problème par Kubica et Stewart (1). La distribution des corrélations angulaires a été mesurée dans un échantillon d'aluminium à 4 K avec une grande précision aux environs du vecteur de Fermi k_F . L'analyse de l'effacement de la discontinuité a permis de dériver une température du positron de $10 \pm 10\text{K}$. Dans cet élément au moins la thermalisation du positron est prouvée. Certaines mesures (2) semblaient indiquer que dans le sodium le positron ne pouvait atteindre une température inférieure à $160 \pm 50\text{K}$, mais l'interprétation des résultats au terme de température minimum du e^+ est sujette à caution dans cet élément qui subit une transformation martensitique à 30 K. Il est probable que cette transformation introduise des défauts; les positrons pourraient y être piégés ce qui aurait pour conséquence de modifier la contribution du positron à la résolution expérimentale.

La première estimation du temps de thermalisation d'un positron a été faite par G.E. Lee-Withing (3) pour un gaz d'électrons libres à 0 K en interaction avec un positron par l'intermédiaire d'un potentiel de Coulomb écranté $-e^2r^{-1} \exp(-qr)$. En appliquant un calcul de perturbation ordinaire, ce modèle très simple permet d'estimer à $3 \cdot 10^{-12}$ sec le temps de thermalisation du positron jusqu'à 0.025 eV (290 K).

Depuis les progrès réalisés dans l'étude des systèmes à N corps par l'introduction des propagateurs, plusieurs formalismes ont été développés pour étudier la thermalisation du e^+ . Deux d'entre eux nous semblent essentiels : le calcul dans l'approximation RPA (Random Phase Approximation) (4) et l'introduction de l'interaction positron-phonon (5).

A. Thermalisation dans l'approximation RPA

La fonction de Green du positron en interaction avec N électrons de conduction est définie par :

$$G_P(x, x') = i \langle N | T \phi(x) \phi^*(x') | N \rangle$$

T est l'opérateur chronologique de Wick et ϕ^* l'opérateur de création du positron en x' . L'approximation d'ordre zéro de cette fonction de Green s'obtient en exprimant les opérateurs de champs dans la représentation de Heisenberg et en négligeant les interactions de Coulomb :

$$G_P^0(x, x') = \frac{1}{V} \sum_{\underline{k}} \exp(i \underline{k}(\underline{x} - \underline{x}') - i k^2 (t - t')) \quad \text{pour } t > t'$$

$$= 0 \quad \text{pour } t < t'$$

où $\underline{k}$ est l'impulsion et V le volume ($\hbar = 2m = 1$).

L'équation de Dyson pour la transformée de Fourier de G_P s'écrit

$$G_P(\underline{k}, \omega) = G_0(\underline{k}, \omega) + G_P^0(\underline{k}, \omega) M(\underline{k}, \omega) G_P(\underline{k}, \omega)$$

où $M(\underline{k}, \omega)$ est l'opérateur de self-énergie et

$$G_P^0(\underline{k}, \omega) = \frac{1}{k^2 - \omega - i0^+}$$

La self énergie est une grandeur complexe que l'on peut écrire

$$M(\underline{k}, \omega) = E(\underline{k}, \omega) + i\Gamma(\underline{k}, \omega)$$

où $E(\underline{k}, \omega)$ est l'énergie de la particule dans l'état $(\underline{k}, \omega)$

$$\text{et } \Gamma(\underline{k}, \omega) = \frac{1}{2\tau(\underline{k}, \omega)}$$

où $\tau(\underline{k}, \omega)$ est le temps de vie de la pseudo-particule dans cet état. Si ces deux grandeurs peuvent être évaluées, on pourra calculer le taux de perte d'énergie $\frac{dE}{dt}$ qui est la somme des produits de Γ par l'énergie transférée d'un état à l'autre.

L'approximation RPA consiste à ne considérer que les interactions par l'intermédiaire du potentiel de Coulomb entre le positron et les électrons libres que l'on caractérise par une fonction de Green $G_e^0(\underline{k}, \omega)$.

A l'aide des graphes de Feynmann, la self-énergie dans cette approximation vaut :

$$M^{RPA} = \text{---} \{ (1 + \text{diagram 1} + \text{diagram 2} + \dots) = \frac{1}{1 - \text{diagram 1}} \text{---}$$

$$= \frac{i}{V} \int \frac{dq}{(2\pi)^3} \int \frac{d\epsilon}{2\pi} \frac{V_q}{1 + 2 V_q G_e^{RPA}(q, \omega)} \cdot G^0(\underline{k}-\underline{q}, \omega - \epsilon)$$

où $\rightarrow$ symbolise $G_p^0(\underline{k}, \omega)$,

$\leftrightarrow$ symbolise la polarisabilité $Q^{RPA}(\underline{q}, \varepsilon)$:

$$Q^{RPA}(\underline{q}, \varepsilon) = -2 \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \int \frac{d\Omega}{\pi} G_e^0(\underline{k} + \underline{q}, \varepsilon + \Omega) G_e^0(\underline{k}, \Omega)$$

et $\{$ symbolise l'interaction de Coulomb V_q .

En évaluant les pôles dans l'intégrant de M^{RPA} et en appliquant le théorème des résidus, on trouve :

$$M^{RPA}(\underline{k}, \omega) = \frac{2}{VZ} \sum_{\underline{q}, \underline{q}'} \frac{\theta(p_F - q) \theta(|\underline{q}' - \underline{q}| - p_F) v q^2}{|1 + 2v_q Q^{RPA}(\underline{q}, (\underline{q}' - \underline{q})^2 - q'^2)|^2} \\ \frac{1}{(\underline{k} - \underline{q})^2 - \omega^2 + (\underline{q}' - \underline{q})^2 - q'^2 - i\delta^+}$$

où p_F est l'impulsion de Fermi et θ la fonction de Heaviside.

A partir de cette expression, Carbotte et Arora ont évalué le taux de perte d'énergie du positron $R(\underline{k})$ qui est défini par

$$R(\underline{k}) = \sum_{\underline{q}} \{ k^2 - (\underline{k} - \underline{q})^2 \} \Gamma(\underline{k}, k^2).$$

Le résultat est $\frac{d\varepsilon}{dt} = -\frac{8}{105} \left(\frac{\pi m^*}{2m\hbar E_F} \right) E^3$

où E est l'énergie du positron de masse effective m^* . Cette relation peut être directement intégrée pour obtenir les temps de thermalisation τ :

$$\tau = \frac{105}{16} \left(\frac{2\hbar E_F m^*}{\pi m} \right) / E^2 \quad (1)$$

Par exemple, pour l'aluminium, on obtient

$$\tau_{300K} = 5,8 \cdot 10^{-11} \text{ sec} \\ \tau_{110K} = 38 \cdot 10^{-11} \text{ sec.}$$

Le temps de vie du positron dans l'aluminium vaut $20 \cdot 10^{-11}$ sec. Le calcul n'est donc pas suffisant pour évaluer la thermalisation.

B. Interaction positron - phonon

Soit $\underline{r}$ et $\underline{R}_\ell$ la position des positrons et des ions et soit $U(\underline{r} - \underline{R}_\ell)$ l'interaction entre eux, l'hamiltonien d'interaction sera

$$H_{e^+ - \text{ion}} = \sum_{\underline{k}} \sum_{\underline{q}} \sum_{\sigma} \langle \underline{k} + \underline{q} | \sum_{\ell} U(\underline{r} - \underline{R}_\ell) | \underline{k} \rangle C_{\underline{k}+\underline{q},\sigma}^+ C_{\underline{k},\sigma}$$

soit $\underline{V}_\ell$ le déplacement des ions autour de leur position moyenne $\underline{R}_\ell^0$, alors

$$\underline{R}_\ell = \underline{R}_\ell^0 + \underline{V}_\ell$$

$\underline{V}_\ell$ est généralement exprimé à l'aide des coordonnées phononiques

$$\underline{V}_\ell = \frac{1}{\sqrt{MN}} \cdot \sum_{\underline{k}} \sum_{\lambda} Q(\underline{k}, \lambda) \varepsilon_{\lambda}(\underline{k}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_\ell^0}$$

où M est la masse ionique et ε_{λ} le vecteur de polarisation phononique. Q , exprimé à l'aide des opérateurs de création $a_{\underline{k},\lambda}^+$ et l'annihilation $a_{\underline{k},\lambda}$ d'un phonon d'énergie $\underline{k}$ et de polarisation λ , vaut

$$Q(\underline{k}, \lambda) = \frac{1}{\sqrt{2\omega_{\lambda}(\underline{k})}} (a_{\underline{k},\lambda}^+ + a_{\underline{k},\lambda})$$

En introduisant ces relations dans l'hamiltonien et en supposant que les fonctions d'ondes des positrons soient des fonctions de Bloch

$$| \underline{k} \rangle = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} u_{\underline{k}}(\underline{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$$

on obtient l'hamiltonien d'interaction positron - phonon :

$$H_{e^+ - \text{phonon}} = \sum_{\underline{k}} \sum_{\underline{q}} \sum_{\sigma} \sum_{\lambda} g_{\underline{k}+\underline{q},\underline{k},\lambda} (a_{\underline{q},\lambda}^+ + a_{\underline{q},\lambda}) C_{\underline{k}+\underline{q},\sigma}^+ C_{\underline{k},\sigma}$$

où $C_{\underline{k},\underline{q}}^+$ et $C_{\underline{k},\sigma}$ sont les opérateurs de création (respectivement d'annihilation) d'un phonon dans l'état $(\underline{k},\sigma)$. Cette expression ne diffère en rien de l'interaction électron-phonon habituelle. g représente la constante de couplage, elle vaut

$$g_{\underline{k}+\underline{q},\underline{k},\lambda} = -i \sqrt{\frac{N}{2\omega_{\lambda}(\underline{q})M}} \underline{q} \cdot \varepsilon_{\lambda}(\underline{q}) M_{\underline{k}+\underline{q},\underline{k}}$$

$$\text{avec } M_{\underline{k}+\underline{q},\underline{k}} = \frac{1}{\Omega} \int e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{x}} u_{\underline{k}+\underline{q}}(\underline{x}) u_{\underline{k}}(\underline{x}) U(\underline{x}) d^3\underline{x}.$$

En faisant l'hypothèse du Jellium (milieu continu), en ne tenant compte que des phonons acoustiques et en négligeant la dépendance en $\underline{k}$ des $u_{\underline{k}}$, Perkins et Carbotte (5) ont montré que l'on peut exprimer la constante de couplage positron-phonon par :

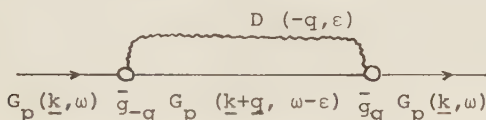
$$g_q = -i \sqrt{\frac{\hbar N}{2\omega_\lambda(q)}} \frac{1}{M} \frac{4\pi e^2}{\Omega} |u_0|^2$$

Pour tenir compte des interactions électroniques, ils introduisent une constante écrantée :

$$\bar{g}_q = \frac{g_q}{\epsilon(q, \omega)}$$

où $\epsilon(q, \omega)$ est la fonction diélectrique qu'ils prennent dans l'approximation RPA.

Il faut ensuite évaluer le terme de correction de la self-énergie du positron dû à l'interaction avec le phonon décrite jusqu'ici. Au premier ordre (approximation de Migdal), on introduit le graphe suivant :



où G_p est toujours le propagateur du positron et D est le propagateur du phonon. La self-énergie s'exprime, dans cette approximation par :

$$\Sigma(\underline{k}, \omega) = -i \frac{\Omega}{(2\pi)^4} \int d^3q \int d\epsilon \bar{g}_q \bar{g}_{-q} \frac{1}{\omega - \epsilon - E(\underline{k} + \underline{q}) - \Sigma(\underline{k} + \underline{q}, \omega, \epsilon) + i\delta} \cdot \left(\frac{1}{\epsilon - \omega(q) + i\delta} - \frac{1}{\epsilon + \omega(q) - i\delta} \right)$$

Migdal (6) a montré que l'on peut en bonne approximation remplacer le propagateur habillé du positron par un propagateur "nu", ce qui simplifie l'équation intégrale qui peut alors être résolue en évaluant les singularités de l'intégrant.

La partie imaginaire donne la probabilité de transition du positron avec un transfert d'impulsion $\hbar q$. On peut donc à nouveau calculer le taux de perte d'énergie du positron dû à l'interaction du positron avec des phonons acoustiques. En y ajoutant le taux de perte d'énergie dû aux interactions avec les électrons calculé précédemment, on obtient :

$$\dot{E} = \dot{E}_{el} + \dot{E}_{ph} = - \left[F E^3 + H E^{3/2} (1 - G / \sqrt{E})^4 \right] \quad (2)$$

$$\text{où} \quad F = \left(\frac{8}{105} \right) \frac{\pi m^*}{2m\hbar E_F}$$

$$G = \frac{1}{2} \beta \sqrt{\hbar^2 / 2m^*}$$

$$H = \frac{2\pi^3 e^4 n m^{*2} a_0^2 |u_0|^4}{\hbar^3 k_F^2 M} \frac{\sqrt{2m^*}}{\hbar^2}$$

avec $\beta = \frac{2m \sigma}{\hbar}$

où $\hbar\omega_q$ est l'énergie du phonon créé lors d'une interaction.

La figure 1.1 montre, dans le cas du sodium, l'énergie du positron en fonction du temps. La droite en pointillés est la seule contribution de l'interaction positron-électron. La courbe en trait plein montre la contribution totale, après l'introduction de l'interaction phononique.

On remarque que cette interaction n'est efficace qu'aux basses énergies et qu'elle a pour effet de diminuer le temps de thermalisation du positron dans le métal.

Ce calcul approximatif est en accord avec les résultats expérimentaux obtenus jusqu'à présent. Il semble donc que même aux basses températures le positron libre ait un temps de vie supérieur à son temps de thermalisation. Ce fait justifie l'effort entrepris pour réaliser un système de détection des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation ayant une haute résolution.

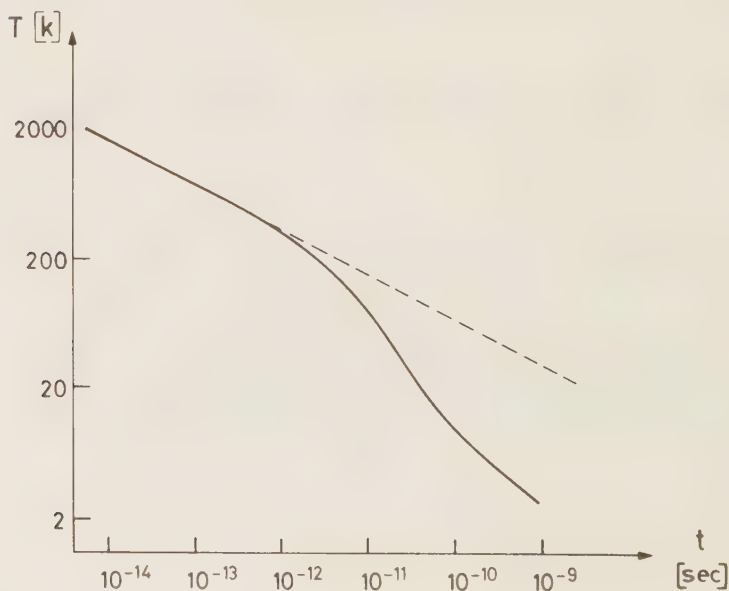


Figure 1.1 : Diminution de l'énergie cinétique du positron lors du processus de thermalisation. (échelles logarithmiques) (référence 5)

1.2 Le processus d'annihilation

Lorsqu'un positron et un électron s'annihilent, l'énergie libérée sous forme de radiation électro-magnétique est

$$E = 2m_0c^2 - \text{énergie de liaison} \approx 2m_0c^2$$

où m_0 est la masse électronique au repos et c la vitesse de la lumière.

L'impulsion de la paire électron-positron étant relativement petite (quelques eV/c), il faut donc qu'au minimum deux particules ou quanta d'énergie participent au processus d'annihilation afin de conserver l'impulsion. La figure 1.2 montre, dans la représentation de Feynmann, quelques processus d'annihilation possible.

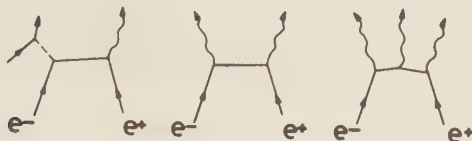


Figure 1.2 : Diagrammes de Feynmann pour les annihilations à un, deux et trois photons

L'annihilation à émission d'un photon n'est possible qu'en présence d'un autre corps (électron ou noyau) qui absorbe l'impulsion de recul.

Les sections efficaces σ de ces trois processus d'annihilation ont été calculés par Dirac (7), Johnson et Al (8), Ore et Powell (9), les rapports entre elles sont :

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} \approx 0.02$$

$$\frac{\sigma_3}{\sigma_2} \approx 0.002$$

et montrent clairement que le processus d'annihilation à deux gamma est le plus fréquent.

1.3 L'annihilation à émission de deux rayons gamma

Dans le référentiel du centre de masse de la paire, les deux photons sont émis antiparallèlement. Dans le référentiel du laboratoire se déplaçant à vitesse $v < c$, les directions sont changées (voir figure 1.3).

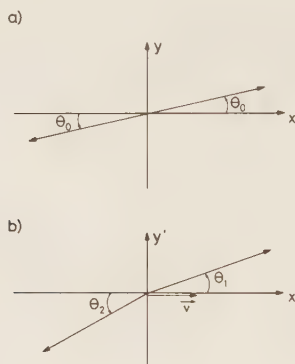


Figure 1.3 : Annihilation avec émission de deux gamma :

- a) dans le référentiel lié au centre de masse de la paire
- b) dans le référentiel du laboratoire

En effet, dans le référentiel du centre de masse :

$$\operatorname{tg} \theta_0 = \frac{y}{x}$$

et dans le référentiel du laboratoire (en appliquant les transformations de Lorentz)

$$\text{on a } \operatorname{tg} \theta_{1,2} = \frac{y'}{x'} = \frac{\sin \theta_0}{\gamma(v) - (\cos \theta_0 \pm \frac{v}{c})}$$

$$\text{où } \gamma(v) = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}$$

$$\text{On en déduit : } \operatorname{tg} (\theta_1 - \theta_2) \approx \delta \theta = \frac{2v}{c} \sin \theta_0 + o\left(\frac{v^2}{c^2}\right)$$

Dans la limite non relativiste, et en ignorant les petites différences d'émission dans chacun des référentiels ($\theta_0 = \theta_1 = \theta_2$ dans $\sin \theta_0$), on obtient

$$\delta \theta \approx \frac{2v}{c} \sin \theta_1 \approx \frac{2v}{c} \sin \theta_2 = \frac{p_T}{m_0 c} \quad (3)$$

où p_T est l'impulsion de la paire, transversalement à la direction d'émission des rayons γ .

L'hamiltonien décrivant l'annihilation d'un électron avec un positron en une paire de photons d'impulsion $\underline{p} = \hbar \underline{q}$ est proportionnel à

$$H \div \sum_{\underline{q}_1} \sum_{\underline{q}_2} a_{\underline{q}_1} b_{\underline{q}_2} \delta_{\underline{q}_1 + \underline{q}_2, \underline{q}} \quad (4)$$

la fonction δ exprimant la conservation de la quantité de mouvement $a_{\underline{q}_1}$ et $b_{\underline{q}_2}$ sont les opérateurs d'annihilation de l'électron et du positron qui s'expriment à l'aide de leurs opérateurs de champs $\phi_- (\underline{x}_1)$ et $\phi_+ (\underline{x}_2)$ par

$$a_{\underline{q}_1} = \frac{1}{\sqrt{V}} \int d^3 \underline{x}_1 e^{-i \underline{q}_1 \cdot \underline{x}_1} \phi_- (\underline{x}_1)$$

$$\text{et } b_{\underline{q}_2} = \frac{1}{\sqrt{V}} \int d^3 \underline{x}_2 e^{i \underline{q}_2 \cdot \underline{x}_2} \phi_+ (\underline{x}_2)$$

En effectuant les sommes sur $\underline{q}_1$ et $\underline{q}_2$, on obtient l'opérateur

$$H \div \int d^3 \underline{x} e^{-i \underline{q} \cdot \underline{x}} \phi_- (\underline{x}) \phi_+ (\underline{x})$$

D'après la théorie des perturbations, la probabilité de transition par unité de temps est

$$\Gamma (\underline{k}) \sim \sum_{n=1}^N | \langle f_n | H | i \rangle |^2$$

où $| i \rangle$ représente l'état initial à N électrons et 1 positron et $| f \rangle$ représente l'état final à $N-1$ électrons. En introduisant l'hamiltonien et en utilisant la relation de fermeture

$$\sum_n | f_n \rangle \langle f_n | = 1 \quad \text{on obtient :}$$

$$\Gamma (\underline{q}) \div \iint d^3 \underline{r} d^3 \underline{r}' \exp \{ -i \underline{q} \cdot (\underline{r} - \underline{r}') \} \langle i | \phi_+^\dagger (\underline{r}') \phi_-^\dagger (\underline{r}) \phi_- (\underline{r}') \phi_+ (\underline{r}) | i \rangle \quad (5)$$

Si l'on considère que les effets de corrélation entre électrons sont négligeables, le problème de l'annihilation d'un positron dans un système à plusieurs électrons peut se réduire au cas du système à un seul électron (approximation des particules indépendantes). Alors, l'application de l'opérateur de champs d'annihilation d'un électron sur un état initial à N électrons, représentés par des fonctions d'ondes à 1 électron, donne une somme des produits des fonctions d'ondes à 1 électron et de l'état final. L'application de l'opérateur de création

d'un électron à ce produit ne donne un résultat non nul que si l'opérateur crée un électron dans l'état à partir duquel il fut précédemment annihilé. Comme le produit des opérateurs de champs de création et d'annihilation du positron est l'opérateur de densité positronique, on obtient (10) :

$$\Gamma(\underline{q}) = A \sum_n \left| \int d^3\underline{r} e^{-i\underline{q}\underline{r}} \psi_n(\underline{r}) \psi_+(\underline{r}) \right|^2$$

où A est une constante, $\psi_n(\underline{r})$ la fonction d'onde du n^{ième} électron et $\psi_+(\underline{r})$ la fonction d'onde du positron.

Le taux global d'annihilation Γ peut être obtenu en intégrant $\Gamma(\underline{q})$ sur tous les $\underline{q}$:

$$\Gamma = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \Gamma(\underline{q}) d^3q$$

La grandeur qui nous intéresse dans ce travail est la distribution d'impulsion, elle est reliée à Γ . En effet, on voit que l'expression de Γ est proportionnelle à la densité électronique dans l'espace réel si ψ^+ est supposé constant. (intuitivement, il est normal que le taux d'annihilation soit proportionnel à la densité électronique). De façon analogue, on peut dire que $\Gamma(\underline{q})$ est proportionnel à la distribution d'impulsion $\rho(\underline{p})$ que l'on appelle la distribution de densité d'impulsion des paires de photons. L'étude détaillée du taux d'annihilation dans un espace libre permet d'établir que la constante de proportionnalité est $1/A\sqrt{N}$. Ainsi on a

$$\rho(\underline{p}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \left| \int e^{-i\underline{p}\underline{r}} \psi_n(\underline{r}) \psi_+(\underline{r}) d^3\underline{r} \right|^2 \quad (6)$$

Rappelons que cette importante relation est établie dans l'hypothèse des particules indépendantes. Elle est à la base d'un grand nombre d'observables. C'est notamment elle qui définit les distributions de corrélations angulaires à deux dimensions telles que nous les mesurons dans ce travail :

$$N(p_x, p_y) \div \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\underline{p}) dp_z \quad (7)$$

1.4 La distribution d'impulsion des paires de photons dans un cristal métallique

Considérons un système périodique de volume V contenant N cellules primitives de volume Ω . Les électrons sont représentés par des fonctions de Bloch dégénérées pour les spins :

$$\psi_{\underline{k}}^{\ell}(\underline{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} u_{\underline{k}}^{\ell}(\underline{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$$

où $\underline{k}$ est le vecteur d'onde réduit et ℓ l'indice de bande. $u_{\underline{k}}^{\ell}(\underline{r})$ est périodique :

$$u_{\underline{k}}^{\ell}(\underline{r}) = \sum_{\underline{G}} B_{\underline{G}}(\underline{k}) e^{i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}}$$

où la somme porte sur les vecteurs du réseau réciproque. Le positron est thermalisé, on peut donc le prendre à l'état fondamental avec $\underline{k} = 0$. Sa fonction d'onde, elle aussi périodique, peut donc s'écrire :

$$\psi^{+}(\underline{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\underline{F}} A_{\underline{F}} e^{i\mathbf{F}\cdot\mathbf{r}}$$

En remplaçant $\psi_{\underline{k}}^{\ell}$ et ψ^{+} dans la relation de $\rho(\underline{p})$ on obtient aisément :

$$\rho(\underline{p}) = \sum_{\underline{k}} \sum_{\ell} \sum_{\underline{G}} |C_{\underline{G}}(\underline{k})|^2 \delta_{\underline{p}-\underline{k}, \underline{G}} \quad (8)$$

Cette relation fait apparaître l'existence des composantes à haute impulsion. En effet, $\rho(\underline{p})$ n'aura pas une structure dans la première zone de Brillouin seulement, mais aussi une série de contributions dans les zones successives, repérées par $\underline{G}$, le poids de ces contributions étant déterminé par le coefficient

$$C_{\underline{G}}(\underline{k}) = \sum_{\underline{F}} A_{\underline{F}} B_{\underline{G}-\underline{F}}(\underline{k}) \quad (9)$$

qui décroît lorsque $\underline{G}$ augmente et dont la valeur dépend principalement de l'extension des fonctions d'ondes électroniques dans l'espace $\underline{p}$.

La relation obtenue pour $\rho(\underline{p})$ montre aussi que puisque la somme porte sur les états occupés, cette grandeur, dans le cas des bandes de conduction, contiendra la répartition des états occupés dans l'espace $\underline{p}$, donc la surface de Fermi. Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction à ce travail, les mesures obtenues donnent $\rho(\underline{p})$ intégré dans une direction. Par

conséquent, elles ne fournissent pas la surface de Fermi, mais sa projection bidimensionnelle dans la direction d'intégration. $\rho(\underline{p})$ pourrait en principe être reconstruit à partir de la mesure d'un certain nombre de projections. Mijnarends (11) a étudié ce problème dans le cas des mesures de corrélations angulaires à une dimension :

$$N(p_z) = \int \rho(\underline{p}) dp_x dp_y \quad (10)$$

Pour les électrons de coeur, les zones de Brillouin sont pleines et la somme sur les états occupés qui apparaît dans l'expression de $\rho(\underline{p})$ est aisément calculée dans l'approximation des liaisons fortes.

1.5 Les interactions positron-électrons

La discussion de la densité d'impulsion des paires de photon $\rho(\mathbf{p})$ a été faite jusqu'à présent avec l'hypothèse des particules indépendantes. Le taux d'annihilation $\Gamma = \int \rho(\mathbf{p}) d^3\mathbf{p}$ est fonction de la densité électronique moyenne au site du positron, moyenné pour tous les sites possibles. Kahana (12) a traité le problème en étudiant la fonction de Green

$$G_{ep}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{x}', \mathbf{y}') = i^2 \langle T \phi_{-}(\mathbf{x}) \phi_{+}(\mathbf{y}) \phi_{+}^{*}(\mathbf{y}') \phi_{-}^{*}(\mathbf{x}') \rangle$$

En effet, la relation (5) permet de voir aisément que le taux d'annihilation s'exprime par

$$\Gamma = (-i)^2 \int d^3\mathbf{x} \lim_{t \rightarrow t+} G_{ep}(\mathbf{x}t, \mathbf{x}t; \mathbf{x}t', \mathbf{x}t')$$

En résolvant l'équation de Dyson généralisée (ou équation de Bethe-Salpeter) dans l'approximation des graphes en échelle et en étudiant la dépendance en $\mathbf{p}$ du résultat obtenu, Kahana dérive un facteur d'amplification de la densité d'impulsion des paires qui dépend de $\gamma = \frac{p}{\hbar k_F}$. Le résultat est dans la forme

$$\epsilon(\gamma) = a + b\gamma^2 + c\gamma^4 \quad (11)$$

où les coefficients a , b et c sont fonctions uniquement de la densité électronique ρ_0 du métal. La figure 1.4 montre la variation de ces coefficients en fonction de r_s (rayon d'une sphère contenant un électron).

La figure 1.5 montre la variation du facteur de correction normalisé calculé pour un gaz d'électrons libre ayant une densité électronique égale à celle du cuivre ($r_s = 2.65$).

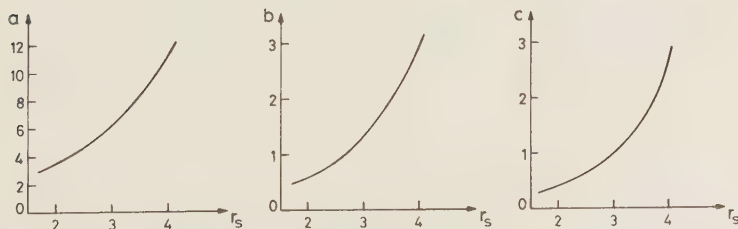


Figure 1.4 : Evolution des paramètres de Kahana, qui décrivent l'effet des interactions positron-électrons libres, en fonction du paramètre de densité électronique

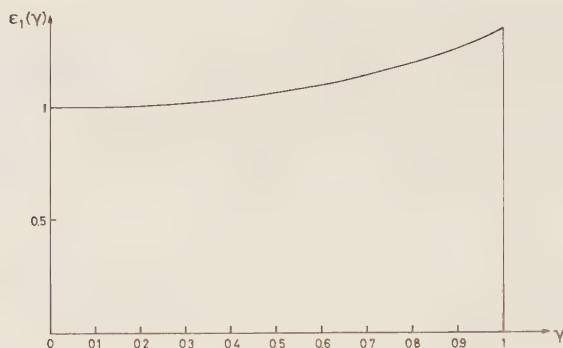


Figure 1.5 : Augmentation du taux d'annihilation en fonction de la quantité de mouvement, illustrée pour un gaz d'électrons libres ayant la densité du cuivre

Remarque

L'application de ce résultat au cas d'un métal réel reste sujette à caution. L'approximation des électrons libres n'est certainement pas valable pour les trous dans la surface de Fermi du cuivre par exemple, or c'est près de la surface de Fermi que la correction est la plus importante. Néanmoins, comme le montre la figure 1.6, ce résultat permet d'expliquer de façon satisfaisante les mesures de la distribution des corrélations angulaires des paires de photons dans le cas des métaux simples (12).

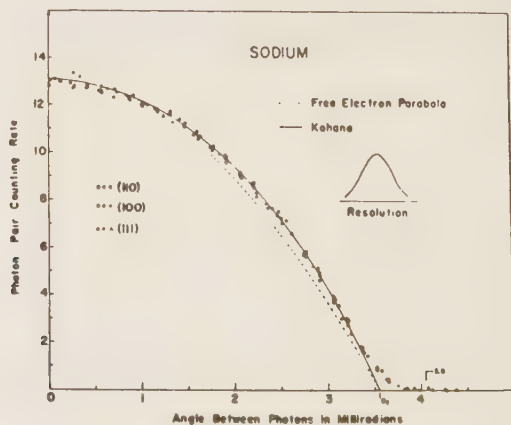


Figure 1.6 : Modification de la distribution des corrélations angulaires dans le sodium provoquée par les interactions positron-électrons (référence 13)

Chapitre 2

DESCRIPTION DU SYSTEME DE MESUREIntroduction

Le dispositif expérimental développé dans ce travail permet la résolution de deux composantes d'impulsion par mesure des corrélations angulaires des paires de photons émises lors des annihilations du positron.

La mesure effectuée $N(\theta_x, \theta_y)$ est déterminée par

$$N(\theta_x, \theta_y) \div \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\underline{p}) \, dp_z$$

où $\rho(\underline{p})$ est la distribution densitaire d'impulsion des paires de photons discutée dans le chapitre 1 et

$$\theta_x = \frac{p_x}{mc}$$

$$\theta_y = \frac{p_y}{mc}$$

sont les composantes angulaires qui sont résolues.

La figure 2.1 montre schématiquement le référentiel de mesure.

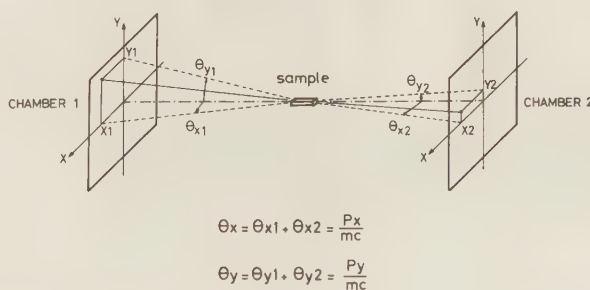


Figure 2.1 : Le référentiel de mesure

La détection des rayons gamma est effectuée à l'aide de deux chambres proportionnelles multi-fils qui sont présentées dans la section 1. L'électronique de sélection d'événement est décrite dans la section 2. Le système digital d'acquisition des données est commenté dans la section 3 tant du point de vue du matériel (section 3.1) que du logiciel (section 3.2). La section 4 est consacrée à l'algorithme de traitement des événements.

2.1. Les chambres à fils et les convertisseurs de haute densité

La figure 2.2 montre un des deux détecteurs (14).

Il est composé au centre de la chambre à fils proprement dite qui comporte un plan de fils anode et deux plans de fils cathode (ou de lecture); cette chambre à fils est bordée de chaque côté par un assemblage de conversion qui libère en direction de la chambre des électrons lorsqu'un rayon gamma γ est arrêté. Sa surface active est de $10 \times 10 \text{ cm}^2$.

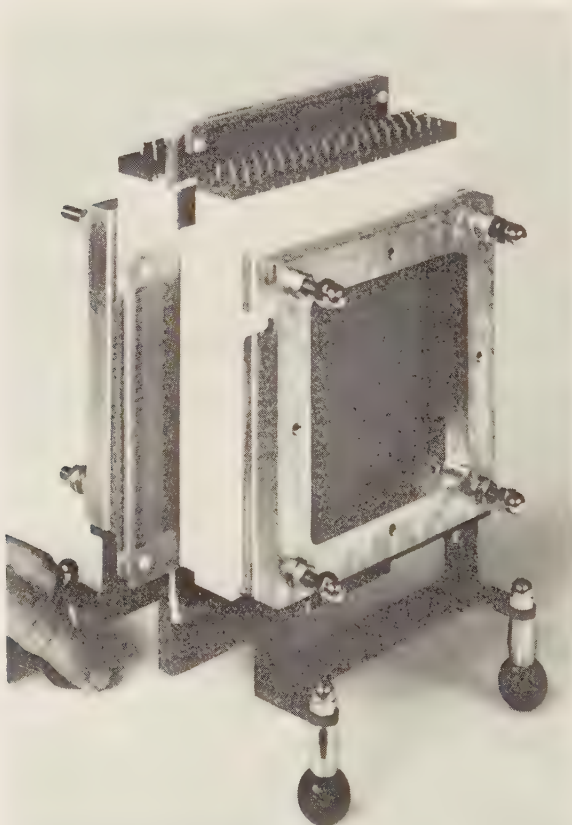


Figure 2.2 : Chambre proportionnelle multifils de haute densité.
La chambre à fils, dont on voit une partie des cadres supports, est placée entre deux convertisseurs (blocs blancs)

A. Le convertisseur à haute densité

Une chambre à fils nue n'est pas efficace pour détecter des rayons gamma, la section efficace d'interaction étant presque nulle dans les gazs. Seule une substance de haute densité permet d'arrêter ce rayonnement par interaction Compton ou photo-électrique (la création de paire étant inexistante pour le rayonnement de 511 keV). Une chambre à fils d'autre part peut détecter, par l'intermédiaire d'un effet d'avalanche dans un champ électrique élevé, la présence d'électrons. Seulement, les électrons libérés par les effets cités plus haut ont un libre parcours très limité dans la matière condensée. Par conséquent, il faut réaliser un compromis entre ces deux exigences contradictoires :

- masse importante pour arrêter les gamma
- petite épaisseur pour que les électrons produits puissent s'échapper.

Il faut donc réaliser un rapport surface sur masse aussi élevé que possible. Une solution élégante à ce problème est présentée à la figure 2.3. Elle a été développée par A.P. Jeavons au CERN (15) et consiste à utiliser, pour recueillir les électrons, un espace de dérive constitué d'un nombre élevé de canaux parallèles.

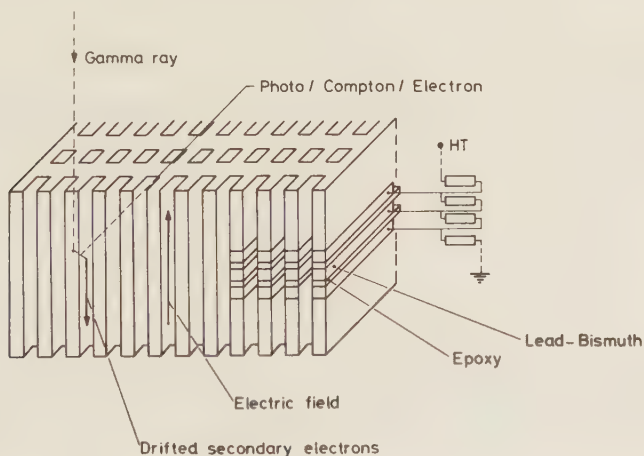


Figure 2.3 : Schéma d'un convertisseur gamma-électron

Chaque convertisseur est constitué de 75 feuilles de plomb-bismuth de 0.2 mm d'épaisseur isolées par 74 feuilles d'époxy de 0.1 mm d'épaisseur. Cet ensemble est percé, sur une surface de 100 cm², de plus de 10⁴ canaux cylindriques

de 0.8 mm de diamètre répartis selon une structure hexagonale compacte ayant un pas de 1 mm. Par l'intermédiaire d'une chaîne de résistances, chaque feuille métallique est portée à un potentiel différent de façon à créer dans les canaux un champ électrique de l'ordre de 2 kV / cm.

Lorsqu'un rayon gamma est converti en électron par effet Compton ou photo-électrique, ces électrons ont, à cause du choix judicieux de la géométrie, une grande probabilité de se propager jusque dans un second canal. Le champ électrique régnant dans ces canaux va faire dériver hors du bloc les électrons secondaires résultant de la ionisation du gaz (isobutane). Ils sont ensuite détectés par la chambre à fils proportionnelle.

La figure 2.4 montre l'évolution de l'efficacité de conversion d'un tel détecteur, calculée et vérifiée expérimentalement à l'aide d'une chambre expérimentale de petite taille équipée d'un convertisseur à canaux rectangulaires (15).

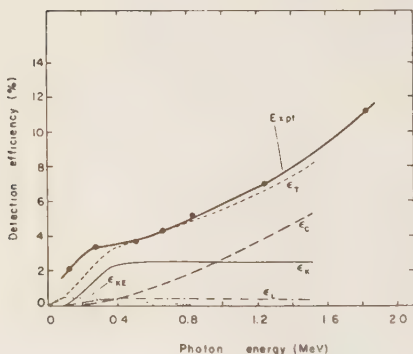


Figure 2.4 :

Efficacité de détection d'un convertisseur à géométrie rectangulaire en fonction de l'énergie du photon incident. Les différentes contributions :

- ϵ_K : capture photo-électrique avec la couche K,
- ϵ_L : capture photo-électrique avec la couche L,
- ϵ_{KE} : pic d'échappement de la couche K,
- ϵ_C : diffusion Compton
- ϵ_T : contribution théorique totale

Les détecteurs que nous avons utilisés sont équipés chacun de deux convertisseurs alignés de façon à ce que les canaux de l'un soient en face des parties pleines de l'autre. De ce fait, l'efficacité globale de chaque détecteur est de l'ordre de 12 %.

Leur réalisation a été admirablement effectuée par M. Kurt KULL, CERN, division SB. Le plomb-bismuth a été percé chimiquement avec une technique semblable à celle utilisée pour la fabrication des circuits imprimés. Les feuilles isolantes ont été usinées à l'aide d'une perceuse numérique. L'assemblage des convertisseurs a demandé un travail minutieux d'une grande précision, on peut en juger si l'on sait qu'après collage des 148 feuilles que compose un détecteur, il est encore possible de faire passer à travers les canaux une aiguille de 0.7 mm de diamètre !

B. La chambre à fils

1. Le principe

Une chambre proportionnelle multifils se compose de trois plans de fils comme le schématise la figure 2.5.

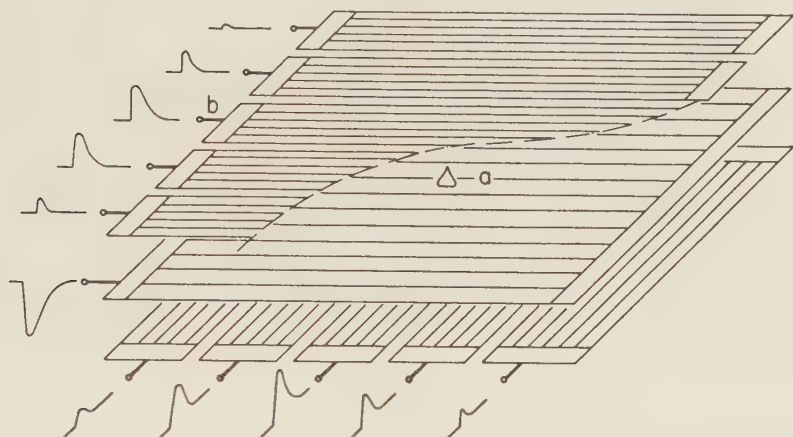


Figure 2.5 : Schéma d'une chambre proportionnelle multifils.

Un plan de fils anodes est porté à un fort potentiel positif. Ce plan est entouré de deux autres plans de fils (plans cathodes ou de lecture) qui sont au potentiel zéro. Ces deux plans sont tissés perpendiculairement l'un à l'autre. Chacun d'eux permet de déterminer une coordonnée de la position d'un événement dans le plan. Lorsqu'un électron passe au voisinage d'un fil anode, il est accéléré dans le champ électrique très intense qui règne au voisinage de celle-ci : si on admet que la distance entre deux fils anodes est grande, le champ près des anodes a la symétrie cylindrique et sa valeur donnée par

$$E(r) \sim \frac{V}{r \ln (D/r)}$$

où D est la distance entre l'anode et les cathodes et r est le rayon du fil anode.

Si le potentiel de l'anode est dans la région de réponse proportionnelle du gaz, l'électron ionise le gaz au voisinage de l'anode. Une avalanche se déclanche qui amplifie la charge initiale d'un facteur 10^4 environ (16). Les électrons atteignent très vite l'anode, mais comme la plupart d'entre eux ne traversent qu'une petite part du potentiel, leur contribution aux pulses induits est très faible. Les ions de gaz sont alors très violemment expulsés du voisinage de l'anode et dérivent vers les fils cathodes. La cinématique de ce mouvement (17) dans une symétrie cylindrique montre que la charge collectée varie comme

$$\ln (t + t_0) / t_0$$

avec $t_0 \sim 2$ nsec. Cela donne une montée extrêmement rapide (~ 15 % de la charge induite récoltée au 100 nsec alors qu'il faut 100 μ sec pour avoir toute la charge).

Pour évaluer la quantité de charges récoltée sur chaque fil cathode, il faut résoudre l'équation de Laplace pour le potentiel : $\nabla\phi = 0$.

La solution de cette équation (18) permet de calculer la charge Q pour une cathode située à la distance x de l'anode où a lieu l'avalanche :

$$Q \div \frac{\pi}{2d^2} \frac{1}{\cosh \left(\frac{\pi x}{d} + 1 \right)}$$

Cette fonction est décroissante en x et définit la distribution des impulsions fournies par les cathodes.

2. La réalisation

Le plan anode est composé de fils de béryllium bronzed'un diamètre de 20 μ m, distants de $1,73 \pm 0.03$ mm. Le pas a été choisi de façon à ce que les fils soient placés dans le prolongement d'une série de canaux du convertisseur. Les fils anodes sont parallèles à la direction y du référentiel de mesure (voir figure 2.1).

Les plans de lecture sont composés de fils de tungstène doré d'un diamètre de 100 μ m distants de 1 ± 0.03 mm. Ces plans sont placés à 3 mm de part et d'autre du plan anode.

Le gaz remplissant les détecteurs doit avoir les deux caractéristiques suivantes :

- grande vitesse de dérive dans les convertisseurs, ce qui est indispensable pour diminuer le plus possible le temps de coïncidence lors de la recherche des événements corrélés en temps

- grand facteur d'amplification de charge lors de l'avalanche afin d'obtenir des pulses d'amplitude suffisante.

Après essais, nous avons choisis l'isobutane pur ($C_4 H_{10}$). Ce gaz est caractérisé par un grand pouvoir de freinage des électrons rapides (6,5 keV/cm pour des électrons de 0,5 MeV contre 3 keV/cm pour l'argon; seul les gazs rares plus lourds présentent des valeurs supérieures à l'isobutane, mais ils sont hors de prix ! (16)). Par conséquent, son facteur d'amplification est élevé (environ 10^5 en régime proportionnel limité). La vitesse de dérive des électrons de faible énergie (5 ev environ) est de 5 cm/ μ sec. Cette valeur fixe à 400 nsec le temps de coïncidence. Cette valeur est plus faible pour l'argon. Nous avons essayé différents mélanges d'argon et d'isobutane, avec et sans adjonction de vapeurs d'alcool isopropylique, afin d'empêcher les décharges et de prévoir l'émission d'électrons pour les fils de lecture lorsque les ions de gaz les atteignent à la fin de leur dérive. Le gain est faible : on peut descendre le temps de coïncidence à 300 nsec, mais le taux de comptage est plus faible et le régime de fonctionnement moins stable, ce qui est un handicap pour les mesures de longue durée.

2.2 Electronique de sélection d'événement

A. Les amplificateurs

Les fils des plans de lecture sont groupés par 4. Chaque groupe est relié à l'entrée d'un amplificateur dont le schéma est donné à la figure 2.6. Les amplificateurs de la 1ère génération (utilisés pendant la phase de mise au point) ont été optimisés dans le cadre de ce travail; les amplificateurs de la 2e génération (utilisés pour les mesures et dont les caractéristiques sont décrites ici) sont le fruit du travail très méticuleux de N. Ford, CERN, division DD, pour réaliser un ensemble performant sur des circuits imprimés redessinés.

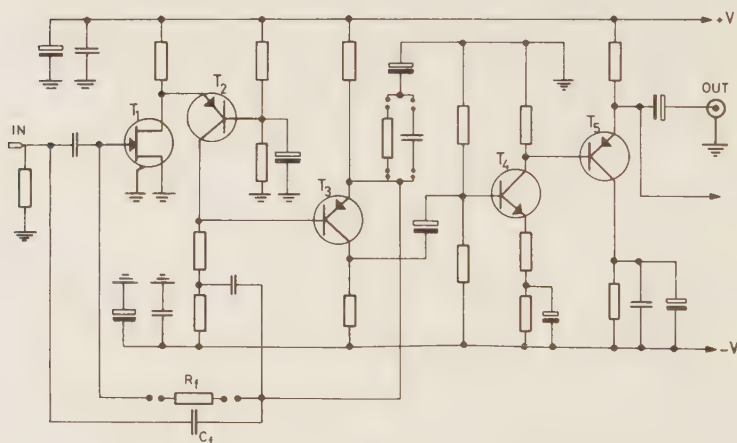


Figure 2.6 : Schéma d'un amplificateur.

Chaque amplificateur est constitué des parties suivantes :

- a) un préamplificateur sensible à la charge (T1-T3) qui converti la charge présente à l'entrée en une tension,
- b) un amplificateur de tension (T4) suivi d'un adaptateur d'impédance (T5).

Les pulses obtenus sont proportionnels à la charge reçue. Etant donné leur constante de temps ($\sim 1\mu\text{sec}$) ils ne donnent pas la charge totale collectée, mais la fraction (environ 20%) qui est collectée dans un temps de l'ordre de la constante de temps. En plus, nous ne nous intéresserons qu'à la hauteur maximum des pulses.

Douze canaux parallèles sont montés sur un circuit, arrangés en deux groupes de 6. Chaque amplificateur a une sortie indépendante de 50Ω d'impédance. En plus, pour chaque groupe, un sommateur incorporé donne une sortie proportionnelle à la somme des pulses fournis par les amplificateurs du groupe.

Il est intéressant d'estimer le nombre d'électrons issus d'un canal de dérive des convertisseurs pour obtenir un pulse de 50 mV (ce qui est près du niveau minimum de la détection). L'amplification de tension étant de 4, le pulse à la sortie de l'amplificateur de charge vaut 15 mV environ. La capacité équivalente de l'amplificateur de charge est de $\sim 2 \text{ pF}$, la charge à l'entrée vaut donc $30 \cdot 10^{-3} \text{ pCb}$. En introduisant le facteur d'amplification dans l'avalanche (10^5), et en tenant compte du fait que sur un plan on ne collecte que la moitié de la charge et qu'en plus les hauteurs des pulses sont proportionnelles à 20 % de la charge induite, on peut estimer à 25 électrons la charge libre produite par l'électron primaire. Ce nombre a le bon ordre de grandeur : il représente le parcours d'un photo-électron dans 1 mm d'isobutane, distance qui est de l'ordre de grandeur des canaux dans les convertisseurs.

La figure 2.7 illustre les pulses récoltés lors de la détection de gamma de 511 keV.

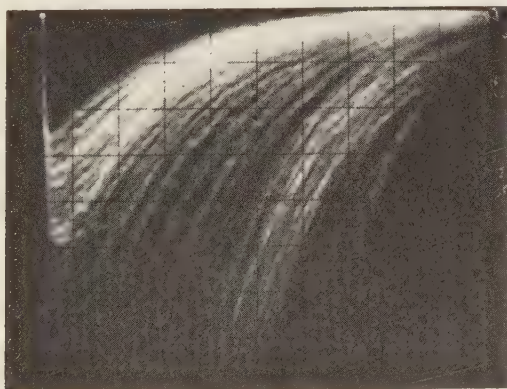


Figure 2.7 : Pulses fournis par une chambre proportionnelle de haute densité lors de la détection de gamma de 511 KeV. Echelles :
 horizontalement : 200 nsec/carré
 verticalement : 100 mV/carré

B. Electronique de logique

La figure 2.8 présente schématiquement l'électronique logique utilisée pour la sélection d'événement. Le principe en est le suivant (nous indiquons entre parenthèses les types des appareils) :

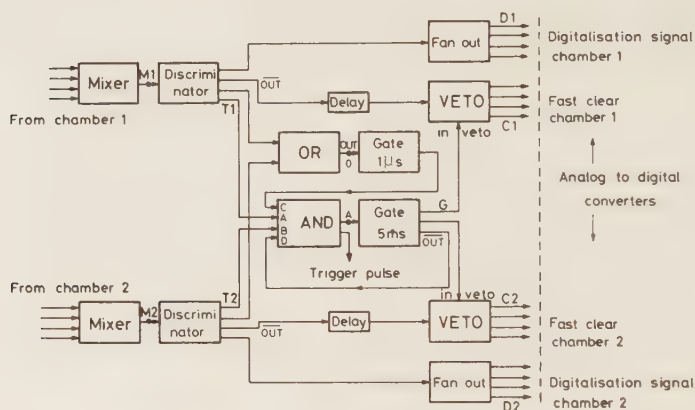


Figure 2.8 : Schéma de l'électronique de logique

Sur chaque chambre indépendamment la somme des pulses d'un plan de lecture est effectuée (Lecroy 127 FL). Lorsque la somme dépasse le niveau de référence du discriminateur (1/4 Lecroy 621 CL), la digitalisation individuelle (Lecroy 2249 A) des signaux fournis par les amplificateurs de toute la chambre est commandée (1/4 Lecroy 621 CL). Le temps de digitalisation (50 nsec) est ajusté pour que la charge convertie par les ADC (Analog to Digital Converters) soit dans le domaine de mesure de ces derniers (0 à 256 pCb). Avec l'inverse du signal produit par les discriminateurs, on génère pour chaque digitalisation un pulse de remise à zéro des ADC, ceci à l'aide d'un discriminateur avec entrée veto (1/2 LRS 161 L). Ce pulse d'effacement est bloqué lorsqu'une coïncidence est détectée.

Une coïncidence (AND, Borer 6234) a lieu si les pulses provenant des deux discriminateurs se recouvrent. La longueur de ces pulses est de 400 nsec, elle est déterminée par la nature des détecteurs (voir section 2.1). La porte de

5 msec (1/2 Lecroy 222) générée lors d'une coïncidence a pour but, pendant le traitement par software, de bloquer la production d'un autre pulse de déclenchement et d'empêcher la remise à zéro des ADC qui contiennent l'information sur les positions des rayons gammas détectés par les chambres à fils. La présence de l'unité logique OR (Lecroy 621 CL) suivie de la porte de 1 μ sec (1/2 Lecroy 222) sur l'unité de coïncidence a pour but de couper une boucle de retour de pulses par les amplificateurs, cette boucle étant provoquée par le découplage insuffisant dans les unités de conversion entre les entrées analogiques et l'entrée de remise à zéro.

La séquence des temps pour les principaux pulses est présentée à la figure 2.9.

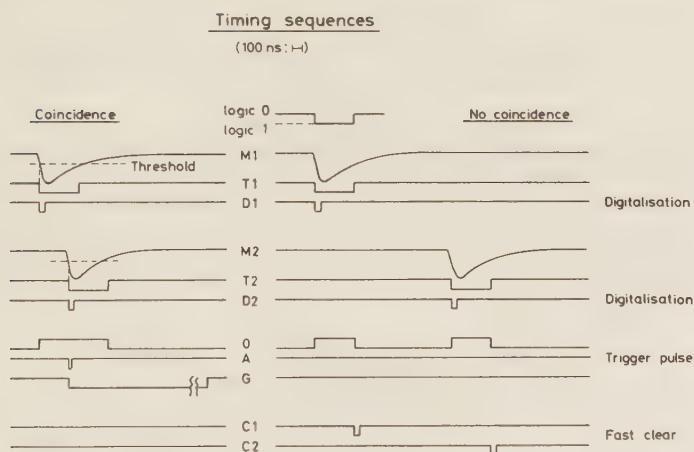


Figure 2.9 : Séquence des temps lorsque les deux détecteurs fournissent des pulses en coïncidence et lorsque les pulses ne sont pas en coïncidence. La dénomination des pulses est la même que sur la figure 2.8

2.3 Acquisition des données

Lorsqu'un signal de coïncidence est fourni par l'électronique de sélection, on trouve dans les mémoires des convertisseurs analogique-digital, des nombres de 10 bits qui indiquent la hauteur des impulsions fournies par les amplificateurs. Le système d'acquisition des données prend alors en charge cet ensemble de chiffres pour l'analyser et le traiter.

A. Matériel

Une description schématique de l'appareillage utilisé pour la prise de données est présentée à la figure 2.10.

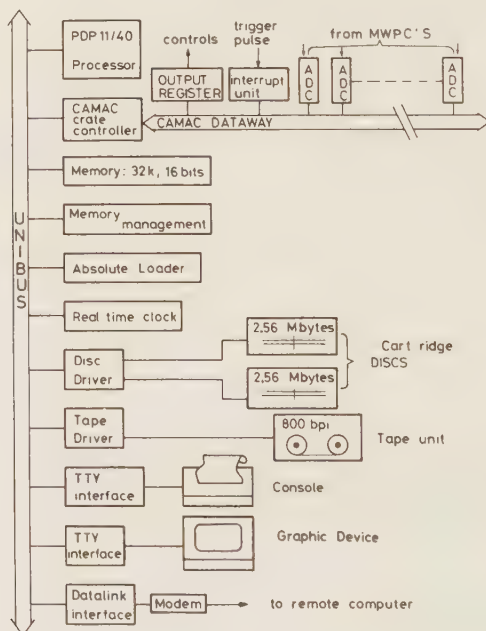


Figure 2.10 : Le système digital d'acquisition et de traitement des données

Cet ensemble repose sur un ordinateur Digital PDP 11/40 équipé d'une mémoire de 32 k mots de 16 bits, d'un module de contrôle et d'arrangement de la mémoire, d'un chargeur câblé et d'une horloge temps réel de 50 Hz. Les mé-

moires de masse sont constituées de deux disques mobiles (DEC - RK05) d'une capacité de 1,25 mégamots chacun et d'une unité de bande magnétique (DEC - TS03) 9 pistes de densité 800 octets par pouce supportant des bandes de 600 pieds de long. Les moyens de dialoguer avec le système sont assurés par une console alphanumérique (DEC -LA36) comportant une imprimante de 30 caractères par seconde, ainsi que d'un terminal alphanumérique et graphique à tube cathodique (Tektronics 4010). Une ligne de transmission de données relie le système au réseau Omega du CERN et donne accès à l'ordinateur CII 10070 du CERN.

Il est prévu dans un avenir assez proche de quitter le réseau CERN pour nous brancher sur le réseau Norsk Data en développement au Département de Physique de la Matière Condensée de l'Université.

Un système d'échange d'information CAMAC est utilisé pour l'acquisition des données, l'interface que nous utilisons est incorporé dans le contrôleur de baie (Ortec DC011).

Les normes CAMAC sont couramment utilisées, en physique des hautes énergies notamment et le grand développement commercial du matériel dans cette direction permet aux utilisateurs de composer un système d'acquisition de données ou de contrôle du processus qui soit parfaitement adapté à leur situation concrète. La table 2.1 résume les différentes fonctions qui sont exécutables avec les normes CAMAC. Ces fonctions peuvent se répartir en trois groupes :

- lecture d'un registre
- écriture d'un registre
- gestion et coordination

Pour commander l'exécution d'une de ces fonctions codée en 4 bits, il suffit que l'ordinateur la dépose accompagnée de l'adresse du registre concerné (codé en 7 bits) dans le registre de commande du contrôleur CAMAC qui gère les différentes unités branchées dans la baie qu'il supervise.

Dans notre cas, l'ensemble CAMAC comprend :

- les 96 convertisseurs analogique-digital. Ils sont reliés aux détecteurs,
- une unité de demande de priorité. Elle est activée par l'impulsion provenant de l'électronique de logique lorsqu'une coïncidence est détectée,
- une unité de sortie (SEN 2027) utilisée notamment pour asservir les unités fournissant la haute tension aux détecteurs. Ceci nous permet de couper leur alimentation lorsqu'une anomalie de fonctionnement est détectée.

CODE F ()	FUNCTION	USE OF R AND W LINES	FUNCTION SIGNALS					CODE F ()
			F16	F8	F4	F2	F1	
0	Read Group 1 Register	Functions using the R lines	0	0	0	0	0	0
1	Read Group 2 Register		0	0	0	0	1	1
2	Read and Clear Group 1 Register		0	0	0	1	0	2
3	Read Complement of Group 1 Register		0	0	0	1	1	3
4	Non-standard	Reserved	0	0	1	0	0	4
5	Reserved		0	0	1	0	1	5
6	Non-standard		0	0	1	1	0	6
7	Reserved		0	0	1	1	1	7
8	Test Look-at-Me	Functions not using the R or W lines	0	1	0	0	0	8
9	Clear Group 1 Register		0	1	0	0	1	9
10	Clear Look-at-Me		0	1	0	1	0	10
11	Clear Group 2 Register		0	1	0	1	1	11
12	Non-standard	Reserved	0	1	1	0	0	12
13	Reserved		0	1	1	0	1	13
14	Non-standard		0	1	1	1	0	14
15	Reserved		0	1	1	1	1	15
16	Overwrite Group 1 Register	Functions using the W lines	1	0	0	0	0	16
17	Overwrite Group 2 Register		1	0	0	0	1	17
18	Selective Set Group 1 Register		1	0	0	1	0	18
19	Selective Set Group 2 Register		1	0	0	1	1	19
20	Non-standard	Reserved	1	0	1	0	0	20
21	Selective Clear Group 1 Register		1	0	1	0	1	21
22	Non-standard		1	0	1	1	0	22
23	Selective Clear Group 2 Register		1	0	1	1	1	23
24	Disable	Functions not using the R or W lines	1	1	0	0	0	24
25	Execute		1	1	0	0	1	25
26	Enable		1	1	0	1	0	26
27	Test Status		1	1	0	1	1	27
28	Non-standard	Reserved	1	1	1	0	0	28
29	Reserved		1	1	1	0	1	29
30	Non-standard		1	1	1	1	0	30
31	Reserved		1	1	1	1	1	31

Table 2.1 : Les fonctions de la norme CAMAC

B. Le logiciel

D'une façon générale, un ordinateur est géré par un superviseur. Les utilisateurs ont accès à la machine pour la réalisation des tâches à travers ce programme résidant en mémoire qui coordonne toutes les actions du processeur, assignant les périphériques, ordonnant les exécutions en fonction des priorités assignées et informant l'opérateur du déroulement des opérations. Nous avons eu à choisir entre deux systèmes d'exploitation :

1. Le RSX-11M qui est fourni par le constructeur de la machine. Ce système est caractérisé par une très grande souplesse d'utilisation, il est doté de 256 priorités différentes et permet le travail au temps réel de plusieurs utilisateurs simultanés. Il offre des langages évolués (FORTRAN, BASIC) en plus d'un assembleur très bien optimisé. Son défaut principal est sa lenteur à acquiesser les demandes de traitement d'une tâche prioritaire activée par un événement extérieur (cette opération peut prendre jusqu'à 1 msec).

2. Le SMO (Small Machine Organiser) qui a été développé au CERN dans le cadre du réseau OMEGA, qui regroupe environ 30 PDP-11 autour d'un ordinateur C11 10070. Le système SMO est caractérisé par sa grande simplicité qui le rend très rapide, sans pour autant diminuer ses possibilités par rapport au RSX-11M. Une grande partie des fonctions de petite priorité sont assurées par la machine centrale (travaux en FORTRAN par exemple) en faisant usage intensif de la ligne de transmission de données. Ceci permet de consacrer le processeur local aux travaux en temps réel tels que les acquisitions des données. Ce système est en plus équipé d'un très bon assembleur dont la syntaxe est en langage PASCAL (19) ce qui en fait un des rares langages assembleur qui soit assez rapidement à la portée de personnes dont l'informatique n'est pas le métier. Les inconvénients majeurs de SMO résident dans sa totale dépendance de la machine centrale (pour sa génération par exemple) et dans le fait qu'il n'est pas doté de procédures d'accès aux mémoires de masses locales (disques mobiles et bande magnétique).

Les exigences de rapidité et la possibilité de bénéficier depuis l'Institut de Physique d'une liaison avec le CERN nous ont fait opter pour SMO.

Au cours de ce travail, nous avons développé essentiellement deux versions de logiciel pour l'acquisition de données. La première faisait appel à la machine centrale et à ses mémoires de masse pour le stockage des données. Cette option s'est avérée assez lourde à utiliser : nous étions tributaires de toutes les conditions anormales survenant à la C11, ceci malgré la programmation d'un système de tampons multiples qui nous permettait de supporter des retards ou des coupures de ligne d'environ 5 minutes sans que l'acquisition

ne soit interrompue. Dans cette version centraliste, il n'était également pas possible de charger le système dans l'ordinateur sans faire appel à la C11 qui gère la bibliothèque des fichiers sur disques.

Nous avons alors décidé de mettre sur pieds une seconde version du logiciel dont la caractéristique principale est l'indépendance quasi totale face à la machine centrale. Pour ce faire, nous avons développé SMO, le dotant notamment de routines d'accès aux disques et bandes magnétiques locales ainsi que de procédures de chargement, d'initialisation et de sauvegarde du système depuis les disques locaux. Dans cette version, la ligne de transmission ne fut plus utilisée que pour générer les différentes tâches en assembleur et pour le développement des programmes FORTRAN utilisés pour exploiter les données.

La prise de données est gérée par 5 tâches autonomes, travaillant en temps réel et capables de dialoguer de façon à coordonner leurs actions respectives. Par ordre de priorité d'exécution, ce sont :

1. TAKEDATA : qui est la tâche responsable, au travers du système CAMAC, de déterminer les coordonnées des rayons gamma détectés. Elle est activée par l'électronique de sélection d'événement; elle lit tous les registres des ADC, examine les valeurs reçues et calcule le centre de gravité des pulses obtenus sur chaque plan de fil (nous reprendrons dans la section 2.4 le détail de ce travail). Elle arrange les valeurs en séquence et les fournit à INTERIME groupés par paquets contenant chacun les coordonnées de 254 événements.

2. INTERIME : qui est une tâche de gestion. Elle est activée par TAKEDATA et reçoit les paquets d'événements qu'elle dirige vers la mémoire de masse sélectionnée par l'opérateur : disque mobile, bande magnétique ou ligne de transmission. Elle permet en outre à l'opérateur d'effectuer des transferts de données d'un support vers un autre. Lors de l'acquisition INTERIME est une tâche dont les exécutions doivent être rapides, par conséquent, elle n'est responsable que du transfert complet vers les disques (temps d'accès moyen : 70 msec). Dans les autres cas, elle transmet les paquets d'événements à SENDDATA ou les stocke provisoirement en mémoire si cette tâche est occupée.

3. SENDDATA : qui est la tâche qui s'occupe des supports d'information lents : bande magnétique et ligne de transmission des données. Elle est activée par INTERIME lorsqu'elle est en mesure de prendre en charge un paquet d'événements et avertit cette tâche lorsque celui-ci a atteint sa destination.

4. DISPLAY : qui est une tâche qui fournit, sur demande de l'opérateur, une image des événements détectés

dans chaque chambre. Elle permet ainsi de contrôler visuellement le fonctionnement des détecteurs. DISPLAY reçoit directement de TAKEDATA les événements en cours d'acquisition. Ces mêmes événements sont envoyés par le chemin décrit plus haut vers les mémoires de masse. La figure 2.11 illustre le résultat du travail de DISPLAY.

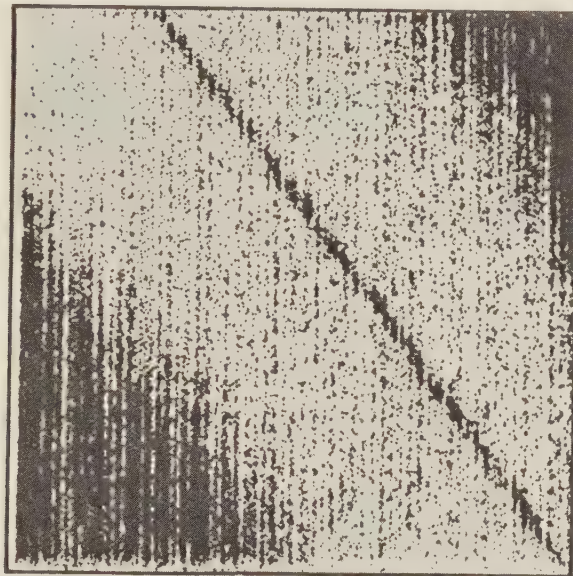


Figure 2.11 : Image de la fente de 1 mm de largeur dans un bloc de 5 cm d'épaisseur, obtenue avec des gamma de 511 KeV

5. SPY : qui est une petite tâche qui contrôle de façon permanente le fonctionnement des autres. Elle est à même de prendre quelques décisions en cas d'anomalies de façon à ce que l'acquisition se poursuive sans intervention humaine. Cette tâche indique aussi périodiquement le nombre d'événements enregistrés depuis son dernier message.

Quelques tâches utilitaires ont aussi été mises au point. Elle permettent

- de calibrer les convertisseurs analogique digital,
- d'accéder aux registres des convertisseurs et d'en imprimer les valeurs,
- d'obtenir une statistique des causes de rejet d'événements,
- de contrôler le format et le contenu des bandes magnétiques,
- d'éprouver les routines de calcul utilisées dans le traitement,
- de mesurer la résolution spatiale des détecteurs.

2.4 Algorithme de traitement des événements

Lorsqu'un événement est signalé à l'ordinateur, il est traité de la façon suivante, pour chaque plan indépendamment :

- Lorsque la digitalisation des pulses fournis par les amplificateurs est terminée (50 μ sec), les registres des convertisseurs sont transférés en mémoire. Leur valeur est proportionnelle à la hauteur des pulses. On dispose ainsi de 24 valeurs numériques par plan de lecture.

- La répartition des pulses sur le plan est analysée. L'événement est rejeté si aucun pulse ne dépasse un seuil, choisi pour éliminer le bruit, ou si plus d'un seul ensemble de pulses contigus se présente au dessus de ce seuil.

- L'ensemble de pulses est alors analysé. Il est rejeté si le nombre de pulses qu'il contient est inférieur à 2 ou supérieur à 7. Il est également rejeté si l'un des pulses a saturé son convertisseur.

- La somme des hauteurs de pulses est encore contrôlée. Elle doit se trouver entre deux limites définies expérimentalement pour que l'événement soit accepté.

Lorsque les différentes conditions décrites ci-dessus sont remplies, le centre de gravité de l'événement est calculé.

Lorsque l'analyse des quatre plans de fils est fructueuse, les centres de gravité sont codés en 8 bits afin qu'un événement complet soit contenu dans deux mots de 16 bits. Après cette opération, la résolution des valeurs codées est de 4/9 mm, ce qui est bien inférieur à la résolution spatiale des détecteurs. Le tableau 2.2 donne les valeurs typiques des taux de rejets d'événement par plan en fonction des différentes causes décrites. Il montre que environ 25 % des événements détectés sont rejetés. L'expérience a montré que la procédure de filtrage utilisée augmente beaucoup la qualité des résultats obtenus; c'est son unique (et totale) justification. L'analyse des valeurs présentées dans le tableau 2.2 montre aussi qu'il n'y a pas de corrélations entre les pulses rejetés par les deux chambres : le produit des taux individuels des chambres donne le taux global à 1 % près. Ce résultat est normal et rassurant.

Si pour une chambre on examine le taux de rejet sur le plan X et le plan Y, on remarque une corrélation qui fait qu'un événement rejeté pour une anomalie sur un des plans a une grande probabilité de présenter une anomalie sur l'autre plan également.

L'examen du tableau des taux de rejet met en évidence la similitude des causes de rejet dans chaque chambre et la différence entre les directions X et Y. Par exemple, on voit que dans les directions X (plans tissés avec des fils parallèles à Y) le taux de rejet pour surcharge des ADC est plus élevé que dans l'autre direction; cela s'explique par le plus fort couplage qui existe entre le plan anode et le plan cathode parallèle.

Table 2.2

RATES OF ACCEPTED EVENTS

global rate : 0.749 

$\begin{array}{l} \text{X1 plane : 0.874} \\ \text{Y1 plane : 0.910} \end{array}$

$\begin{array}{l} \text{X2 plane : 0.880} \\ \text{Y2 plane : 0.929} \end{array}$

RATES OF REJECTED EVENTS (PERCENT) :

criterion of rejection	X1 plane	Y1 plane	X2 plane	Y2 plane
Many clusters of pulses	1,3	5,35	1,5	2,65
No pulses above the threshold	0,8	0,6	0,3	0,3
ADC overload for at least one pulse	6,75	2,45	8,0	1,6
Cluster too narrow	2,9	0,25	1,5	0,2
Cluster too large	0,1	0	0,05	0,1
Sum of the pulses too small	0,15	0,15	0,25	0,5
Sum of the pulses too big	0,65	0,2	0,45	1,75
Total	12,6	9,0	12,0	7,1

Table 2.2 : Taux des événements acceptés, mesuré dans les conditions normales de la prise de données, et description quantitative des causes de rejet d'événement

Chapitre 3

CRYOGENIE ET CRISTALLOGENESE

Introduction

Ce chapitre décrira dans sa première section le cryostat construit pour réaliser les mesures d'annihilation de positrons à basse température. La section 2 rapportera le travail de croissance cristalline entrepris sous la direction du Dr. E. Walker afin de disposer pour les mesures de monocristaux d'aluminium, de cuivre et du composé intermétallique V_3Si .

3.1 Cryogénie

Le cryostat réalisé pour les mesures d'annihilation de positrons est conventionnel. Il se compose de deux vases Dewar concentriques (azote et hélium) et d'une enceinte interne isolée. La température de l'échantillon peut ainsi être réglée de 4,2 K à 300 K. Un transfert automatique d'azote liquide a été réalisé ainsi qu'une unité de mesure du niveau d'hélium liquide. La figure 3.1 montre l'ensemble cryogénique vu depuis l'axe de mesure. Sur la figure 3.2 on voit la partie centrale du cryostat avec l'échantillon positionné sur l'axe des collimateurs d'or dont les trous ont un diamètre de 4 mm. La source est montée sous l'échantillon à une distance réglable (généralement 3 mm). Afin de diminuer au maximum l'absorption et la diffusion de la radiation d'annihilation, le cryostat est équipé de fenêtres de mylar.

L'écrantage des radiations est assuré radialement par un cylindre de plomb entourant le Dewar et axialement par les blocs visibles sur la figure 3.2. La figure 3.1 montre également l'écran mobile qui est amené jusqu'au sommet du cryostat lors du transfert de la source radioactive. L'écrantage des radiations a été prévu pour l'utilisation de sources jusqu'à 500 mCi de ^{58}Co .

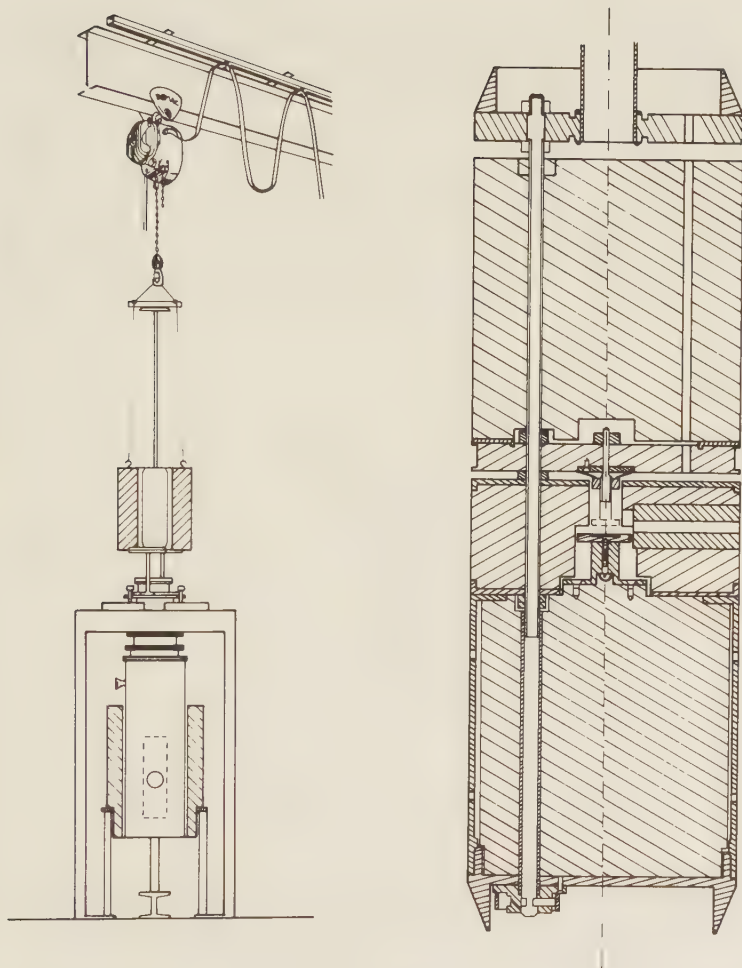


Figure 3.1 : Vue générale du système cryogénique développé pour la détection de la radiation d'annihilation à basse température

Figure 3.2 : Support de l'échantillon et de la source avec les collimateurs intégrés

3.2 Cristallogenèse

A. Aluminium et cuivre

L'aluminium et le cuivre ont des points de fusion inférieurs à 1100°C . La croissance de monocristaux peut être obtenue à partir de la phase liquide par la méthode de Czochralski illustrée par la figure 3.3.

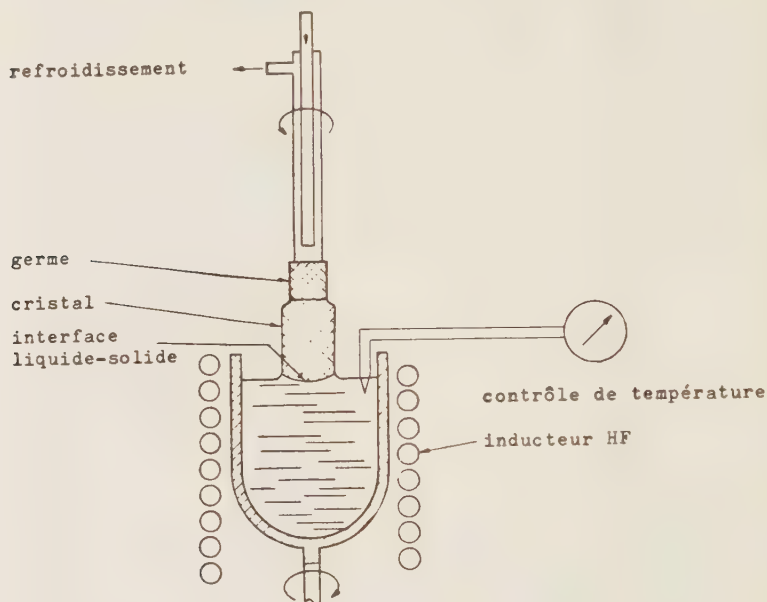


Figure 3.3 : Principe de la cristallogenèse par la méthode de Czochralski

La première croissance s'effectue à partir d'une pointe de façon à obtenir un monocristal qui, après orientation, est utilisé pour faire croître des cristaux orientés.

La croissance est effectuée à la vitesse de 2 cm/heure sous atmosphère d'argon. Le métal utilisé est de pureté 5N, il est contenu dans un creuset en graphite dégazé. La température est contrôlée par un thermocouple chromel-alumel. Les monocristaux obtenus ont un diamètre de 10 ± 1 mm et une longueur de 3 à 5 cm.

B. Composé intermétallique V_3Si

Les monocristaux de V_3Si ont été réalisés par fusion de zone comme illustré par la figure 3.4. L'alliage de départ a été préparé dans un four à arc électrique et mis en lingots de section ovale à l'aide d'un four à induction. La vitesse de cristallisation choisie pour obtenir une phase monocristalline homogène est de 1,2 cm/heure, la température étant contrôlée par une cellule photo-électrique. L'expérience nous a montré que la fusion de zone sous atmosphère d'argon provoquait une perte de silicium qui se traduisait par une diminution du T_C des cristaux obtenus par rapport à l'alliage de départ. L'évaluation de ces pertes par pesage est en accord avec les mesures de T_C en fonction de la concentration (20). Ces observations nous ont conduits, pour les cristaux définitifs, à utiliser des alliages $V_{0.745}Si_{0.255}$.

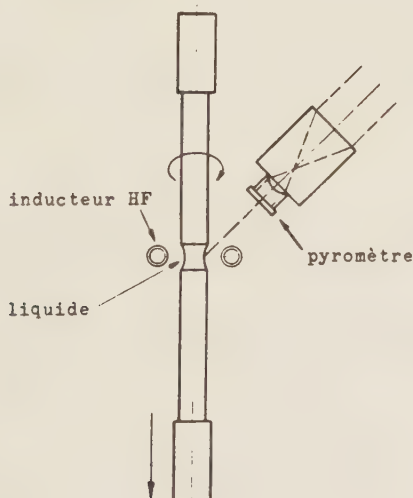


Figure 3.4 : Principe de la cristallogenèse par la méthode de la zone flottante en fusion

Nous avons fait croître quatre cristaux à partir de germes préorientés obtenus lors des essais. Leur température de transition supraconductrice est de 16,8 K et a une largeur de 0,3 K. Ils ont un diamètre de 7 mm et une longueur allant de 1 à 4 cm. Pour trois d'entre eux, l'axe du cylindre est (100), le quatrième étant (110). Une mesure de chaleur spécifique a été réalisée sur ce dernier (21). Comme le montre la figure 3.5, le cristal subit une transformation martensitique à 21,6 K.

Une partie d'un des cristaux (100) a été utilisée par Jean-Louis Staudenmann, pour mesurer les densités électroniques (22) dans le composé V_3Si .

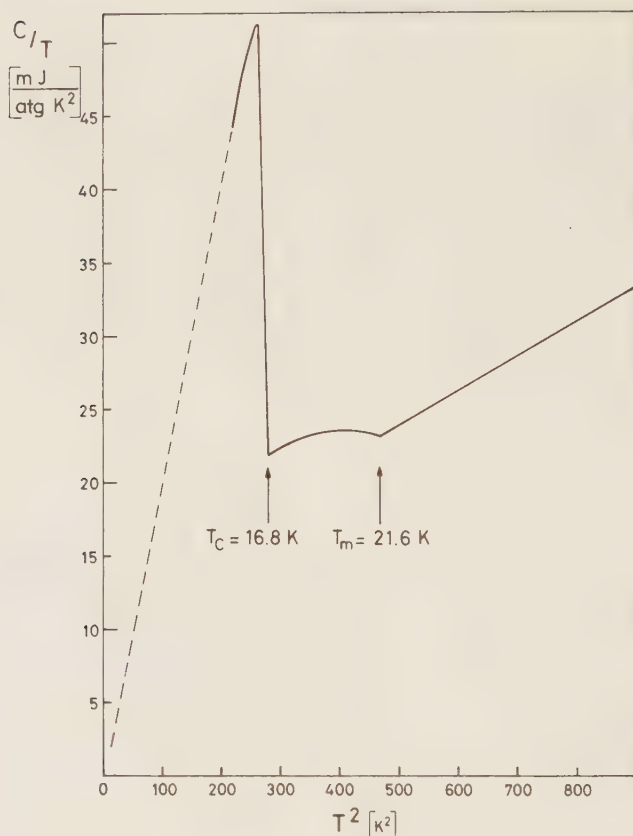


Figure 3.5 : Mesure de la chaleur spécifique d'un cristal de V_3Si dont le volume est de $2,5 \text{ cm}^3$ et l'axe principal $[110]$

C. Préparation des échantillons

Les échantillons utilisés pour les mesures d'annihilation de positrons sont des parallélipèdes rectangles de $10 \times 2 \times 0.8 \text{ mm}^3$. Ils ont été taillés dans les cristaux par électroérosion. La technique de Laüe a été utilisée pour obtenir des faces alignées à 1 degré avec les directions cristallines choisies. Après la taille des échantillons, nous procédons à une attaque chimique afin d'éliminer la couche superficielle qui a été déformée par l'usinage à étincelles. Afin de diminuer le nombre de défauts, les échantillons sont encore recuits pendant 24 heures à une température inférieure de 200° à leur point de fusion.

Chapitre 4

PARAMETRES EXPERIMENTAUX

Introduction

Il est indispensable, avant de présenter les mesures effectuées, de traiter quelques points dont la maîtrise est indispensable à l'interprétation des résultats obtenus.

Etant donné la disparité des sujets abordés, ce chapitre ne possède pas de structure logique. Dans la première partie, nous discuterons le problème du bruit de fond dans les spectres mesurés. Nous aborderons ensuite la question capitale de la résolution angulaire : nous présenterons les mesures et les calculs entrepris afin de la déterminer avec précision. Dans la troisième section, nous traiterons de la variation de l'efficacité de l'appareil en fonction de l'angle mesuré; c'est dans la mesure où cette dépendance peut être corrigée avec exactitude que l'analyse des spectres mesurés peut être entreprise. Nous terminerons en mentionnant les méthodes de construction d'histogrammes redondants que nous utiliserons pour mettre en évidence les effets de petite amplitude présent dans nos mesures.

4.1 Le bruit de fond dans les distributions de corrélations angulaires

Le bruit de fond dans les mesures de corrélations angulaires entre deux photons est dû aux coïncidences fortuites qui peuvent être enregistrées. Cette source d'événements indésirables est à analyser avec beaucoup de soin lorsque l'on utilise des chambres proportionnelles à haute densité. Ceci pour deux raisons :

1. La résolution temporelle τ de ces détecteurs est petite. Nous utilisons un temps de 400 ns, alors que pour les scintillateurs $\tau = 30$ ns est suffisant. Le taux de coïncidences fortuites R (random) est donné par

$$R = 2 \tau N_1 N_2$$

où N_1 et N_2 sont les taux de comptage sur les détecteurs. On voit que, de ce point de vue les chambres proportionnelles ne sont pas dans une situation favorable. Néanmoins, étant donné leur petite efficacité de détection et le petit angle solide sous lequel est vu l'échantillon, le taux de comptage est faible réduisant d'autant le taux de coïncidences fortuites.

2. Les chambres proportionnelles à haute densité n'ont aucune résolution en énergie, il est donc impossible d'éliminer les événements provenant de gamma autres que du rayonnement d'annihilation, alors qu'avec des scintillateurs l'utilisation d'un analyseur mono-canal permet de définir une fenêtre d'énergie centrée sur 511 KeV, éliminant ainsi toutes les autres énergies qui contribuent, dans notre cas, à augmenter le taux de comptage sur les détecteurs et par conséquent le taux de coïncidences fortuites.

Le radioisotope de Na^{22} , que nous utilisons comme source de positrons, émet avec chacun d'eux un γ de 1.28 MeV, comme le montre le schéma de désintégration à la figure 4.1. Il est donc primordial d'écranter le mieux possible la source afin de diminuer au maximum sa contribution au taux de comptage sur les chambres. Ceci a été réalisé à l'aide de deux collimateurs en or de 36 mm d'épaisseur.

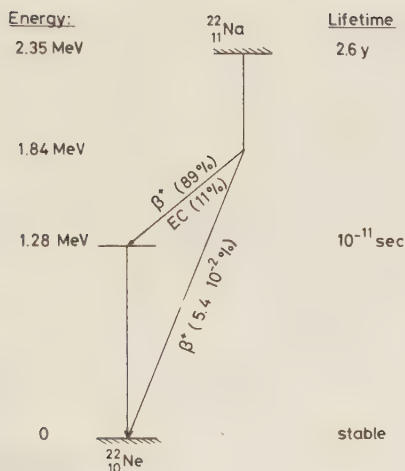


Figure 4.1 : Schéma de désintégration de l'isotope $^{22}_{11}\text{Na}$

Dans le but de nous assurer que l'écrantage ainsi obtenu est suffisant, nous avons procédé à une mesure du spectre d'énergie des gamma arrivant sur les détecteurs. Cette mesure a été effectuée avec du matériel obligeamment prêté par le Département de Physique Nucléaire. Le schéma du dispositif utilisé est présenté à la figure 4.2. Il se compose de deux scintillateurs NaI (Tl) et d'un circuit de coïncidence rapide dont chaque branche est dotée d'un analyseur mono-canal.

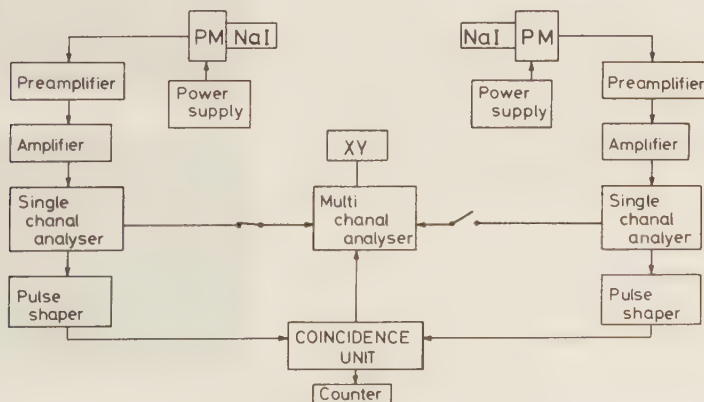


Figure 4.2 : Schéma de l'appareillage utilisé pour mesurer les spectres d'énergie du faisceau de gamma au niveau des chambres proportionnelles de haute densité

La figure 4.3 illustre qualitativement les spectres d'énergie mesurés :

a) La source est sans écran :

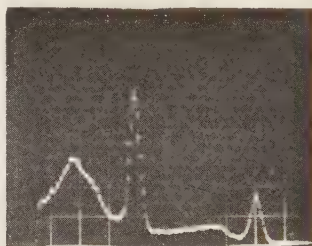
On observe nettement deux pics à 0.511 KeV et à 1.28 MeV ainsi que le fond Compton à basse énergie.

b) Le spectre d'énergie reçu par un détecteur dans les conditions normales de mesure (source écrantée, seul l'échantillon est en vue directe). Le pic de 1.28 MeV est fortement diminué alors que la radiation d'annihilation prédomine.

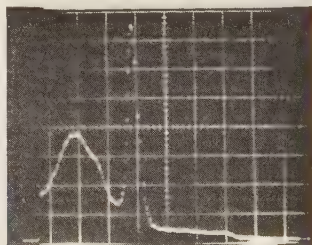
c) Le spectre d'énergie sur un détecteur fonctionnant en coïncidence avec $\tau = 400$ ns :

Les coïncidences fortuites faisant intervenir un gamma d'énergie supérieure à 511 KeV sont à la limite de la détection.

a) sans coïncidence :
pas d'échantillon,
source nue.



b) sans coïncidence :
avec échantillon,
source écrantée.



c) en coïncidence :
mêmes conditions
que b).



Figure 4.3 : Spectre d'énergie du faisceau de gamma au niveau des chambres proportionnelles à haute densité.

Quantitativement, nous avons mesuré la fréquence des coïncidences en fonction des différents domaines d'énergie : fond Compton (c), pic d'annihilation (p) et hautes énergies (h). On peut exprimer le taux de coïncidence total par :

$$t = t_{c-c} + t_{p-p} + 2 t_{c-p} + t_{h-h} + 2 t_{h-p}$$

où par exemple t_{c-c} est le taux d'annihilation entre deux gamma détectés dans le fond Compton des scintillateurs.

Nous avons obtenu :

$$t_{c-c} = 25.8 \pm 0.5 \%$$

$$t_{p-p} = 20.9 \pm 0.3 \%$$

$$t_{c-p} = 26.6 \pm 0.5 \%$$

$$t_{h-h} = 0.05 \pm 0.05\%$$

$$t_{h-p} = 0.1 \pm 0.05\%$$

Ces valeurs, mesurées à l'aide de deux scintillateurs NaI (Tl), doivent être interprétées, elles ne s'appliquent pas directement aux chambres proportionnelles. En effet, les scintillateurs sont moins efficaces aux hautes énergies qu'aux basses alors que la tendance est contraire pour nos détecteurs (voir figure 2.4). Les valeurs extrapolées en introduisant les efficacités relatives des deux types de détecteurs sont :

$$t_{c-c} = 21.6 \pm 0.5 \%$$

$$t_{p-p} = 26 \pm 0.7 \%$$

$$t_{c-p} = 26 \pm 0.7 \%$$

$$t_{h-h} = 0.11 \pm 0.08\%$$

$$t_{h-p} = 0.185 \pm 0.08\%$$

Ces valeurs montrent que le taux des coïncidences qui font intervenir un gamma de haute énergie est inférieur à 0.5 % et par conséquent que la contribution de la source aux spectres expérimentaux est négligeable.

Cependant, cette valeur de 0.5 % ne représente pas le taux de coïncidences fortuites réel puisque le flux de gamma est essentiellement composé de photons d'annihilations qui sont soumis à la loi $R = 2 T N_1 N_2$.

Si I est l'activité de l'échantillon, A l'angle solide que soutend les détecteurs et E l'efficacité de ces derniers, on a

$$N_1 = N_2 = 2IAE.$$

Le taux global de coïncidence S est alors donné par

$$S = 2IAE^2$$

et le rapport signal sur bruit vaut

$$\frac{S}{R} = \frac{1}{4 A I \tau}$$

Avec $A = 4 \cdot 10^{-5}$, $I \approx 1/2 I_0 = 5.5 \cdot 10^8$ (s^{-1}) (où I_0 est l'activité de la source : 30 mCi) et $\tau = 4 \cdot 10^{-7}$ (s) on obtient

$$\frac{S}{R} \approx 28$$

ce qui correspond à un taux de coïncidences fortuites de 3.4 % environ. Cette valeur est élevée en comparaison des 0.5 % que l'on a habituellement avec des détecteurs unidimensionnels au NaI (Tl). Remarquons néanmoins que les coïncidences fortuites sont réparties uniformément sur tout le domaine des angles mesurés. Or ce domaine est bien supérieur au domaine des angles que recouvre une surface de Fermi. Aussi, si l'on rapporte le nombre de coïncidences fortuites se produisant uniquement dans ce domaine au nombre total de coïncidences utilisées pour décrire la surface de Fermi, le taux "local" des coïncidences fortuites peut descendre à 1 %. Cette valeur n'est pas unique, elle dépend de la surface de Fermi mesurée, aussi sera-t-elle précisée de cas en cas dans la suite du travail.

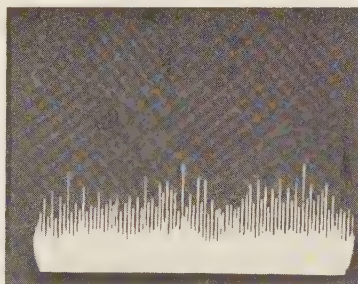
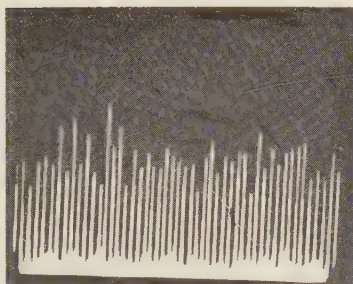
4.2 Les résolutions spatiales et angulaires

La résolution spatiale des chambres proportionnelles multifils n'est pas identique dans les deux directions de détection. En effet, dans la direction (y) des fils haute-tension, le lieu d'une avalanche peut être quelconque et la détection est continue, tandis que dans la direction (x) perpendiculaire aux fils anodes, le lieu des événements est déterminé par la position du fil sur lequel ils créent une avalanche.

Nous avons mesuré dans chacune des directions la distribution spatiale des événements provoqués par un flux de photons d'annihilation également distribué sur toute la chambre, le résultat est présenté à la figure 4.4.

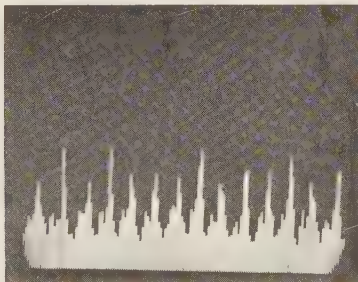
Direction x

Direction y



a) x : vue d'ensemble

c) y : vue d'ensemble



b) x : détail, 1 canal=1/10mm

d) y : détail 1 canal=1/10mm

Figure 4.4 : Distribution des centres de gravités sur les plans de fils dans les directions x et y.

La distribution en x met nettement en évidence les fils de haute tension et on vérifie (b) qu'ils sont distants de 1.7 mm.

Dans la direction y , la distribution n'est pas continue comme on l'attend, mais présente une structure de 1.0 mm de période. L'intensité de cette structure est néanmoins inférieure à celle observée dans la direction x . Comme l'indique la figure 4.5 a, cette structure représente "l'ombre" des fils du plan de lecture tissé dans la direction x : les électrons provenant du convertisseur situé du côté de ce plan de lecture ont leur trajectoire déviée au voisinage des fils cathodes. Remarquons que pour les électrons provenant du convertisseur opposé, la déviation se fait selon x (figure 4.5 b); mais comme l'indique schématiquement la figure, cette déviation n'influence pas la distribution des événements qui, dans cette direction, est et reste uniquement déterminée par la position des fils anodes.

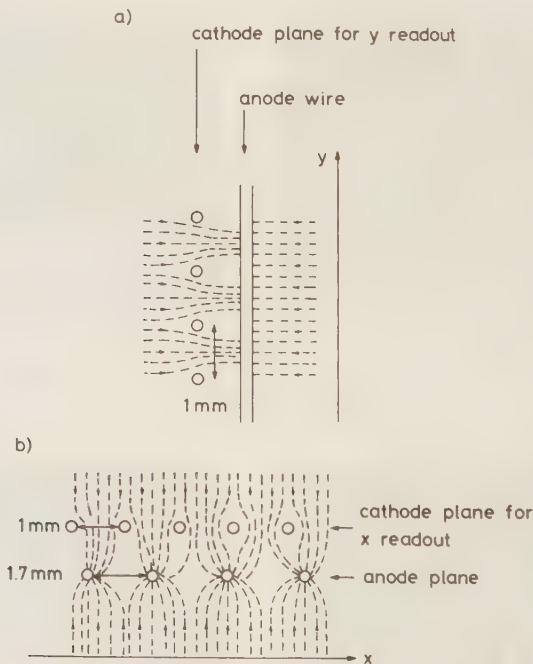


Figure 4.5 : Lignes de champs électrique au voisinage des fils cathodes et anodes

a) détection dans la direction y

b) détection dans la direction x

Pour mesurer la résolution spatiale des détecteurs, nous avons dû tenir compte de ces différents effets. Nous avons porté un soin tout particulier à la mesure de la résolution spatiale des détecteurs dans la direction y (le long des fils anodes) puisque dans la direction x celle-ci est en bonne approximation représentée par une fonction carrée de largeur égale au pas des fils de haute tension, à savoir 1.73 mm.

La résolution spatiale a été déterminée selon y en enregistrant l'image d'une fente de 0.5 mm de large réalisée dans un bloc de plomb de 50 mm d'épaisseur. La fente a été alignée avec précision devant le détecteur et une source de ^{22}Na de 2 mCi a servi à créer l'image qui est présentée à la figure 4.6 après compensation de la variation spatiale de réponse du détecteur. La correction a été effectuée en divisant la réponse du détecteur derrière la fente par sa réponse en l'absence de fente. La largeur à mi-hauteur de l'image reçue est de 2.5 ± 0.1 mm. Il y a deux causes à l'élargissement observé :

- la résolution spatiale du détecteur
- l'effet de parallaxe allié à l'absorption des gamma dans le plomb.

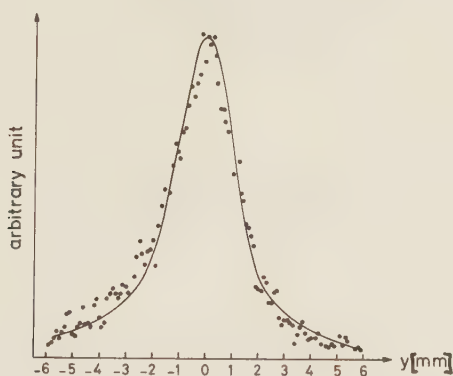


Figure 4.6 : Réponse d'une chambre proportionnelle multifils à un faisceau collimaté de gamma de 511 KeV. La détection a lieu dans la direction perpendiculaire aux fils anodes. Les points représentent la mesure, compensée pour la variation spatiale de la réponse du détecteur. La courbe représente l'image calculée, pour une résolution spatiale des détecteurs de 1.7 mm (FWHM)

La réponse obtenue est une convolution de ces deux facteurs. Afin d'extraire la résolution spatiale, un calcul numérique de la réponse a été effectué en introduisant la géométrie de la fente et des convertisseurs avec la résolution comme paramètre libre. Le meilleur accord obtenu est représenté superposé à la mesure dans la figure 4.6. Il correspond à une résolution spatiale gaussienne de 1.7 mm de large à mi-hauteur. La précision de ce résultat est de ± 0.1 mm.

La résolution angulaire est une convolution de la fonction de réponse de chaque détecteur. De plus, lorsque la source du rayonnement a une certaine extension spatiale (la largeur de l'échantillon dans notre cas), il faut introduire ce facteur dans l'estimation de la résolution angulaire. Le résultat de ce calcul est présenté à la figure 4.7 (courbe $T=0K$).

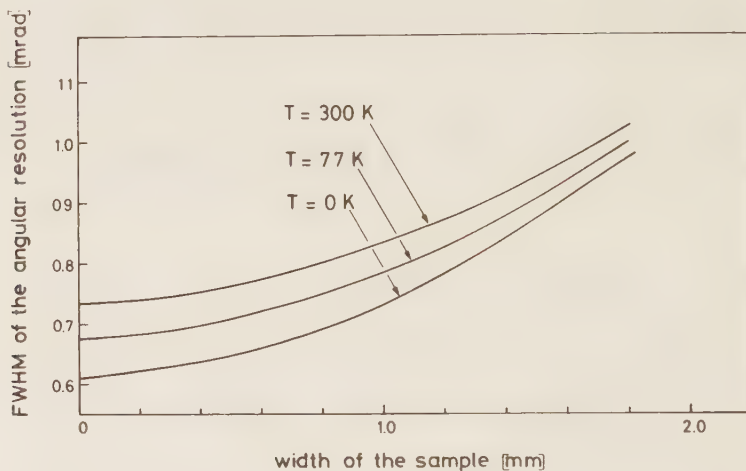


Figure 4.7 : Résolution angulaire (FWHM) de l'appareil, pour différentes températures de l'échantillon, donnée en fonction de la largeur de ce dernier.

Ce résultat donne en bonne approximation la résolution angulaire dans les deux directions de détection puisque la largeur à mi-hauteur de la fonction de résolution spatiale est la même (x : fonction carrée, 1.73 mm; y : gaussienne, 1.7 ± 0.1 mm).

Les échantillons utilisés ont typiquement 1 mm de large et sont disposés entre les détecteurs de façon à ce que le petit côté de la face exposée aux positrons soit parallèle à x (voir figure 2.1). Comme la pénétration des positrons à l'intérieur de l'échantillon est négligeable (inférieure à 50 μm) la résolution géométrique a une largeur à mi-hauteur de 0.73 mrad en x et 0.61 mrad en y.

A la résolution géométrique vient s'ajouter une contribution due au mouvement thermique du positron. En supposant que le positron soit thermalisé et que la densité des positrons soit suffisamment faible dans l'échantillon (cette condition est remplie de toute évidence !) pour que l'on puisse

lui appliquer la statistique de Boltzmann, cette contribution s'exprime par :

$$F_+(p) = A \exp(-p^2 / 2m^* KT)$$

où T est la température, p la quantité de mouvement du positron et $m^* = \alpha m$ sa masse effective, le facteur α étant égal à 2 ± 0.2 (23). Cette distribution, qui est gaussienne, a un sigma qui s'exprime par

$$\sigma_+ = \sqrt{\alpha \frac{Kt}{mc^2}}$$

et qui s'élève à 0.161 et 0.318 mrad pour les températures de 77 et 300 K respectivement.

A température non nulle, la résolution angulaire s'exprime donc par une triple intégrale portant sur

- la fonction de résolution des détecteurs
- la largeur de l'échantillon
- le mouvement thermique des positrons.

L'introduction de ces trois facteurs détermine les courbes T = 77 et T = 300 K de la figure 4.7 qui montrent, en fonction de la largeur de l'échantillon, de quelle façon se détériore la résolution angulaire lorsque croît la température de l'échantillon mesuré.

La précision de ces résultats dépend principalement de la forme réelle de la fonction de résolution des détecteurs. Elle a été supposée gaussienne et l'accord obtenu à la figure 4.6 nous permet de penser que cette hypothèse n'est pas trop éloignée de la réalité ; cependant les convertisseurs, et à fortiori les plans de fils, sont loins d'être des senseurs continus ce qui nous porte à croire que la gaussienne choisie pour calculer la résolution angulaire n'est pas la distribution parfaitement adaptée à la répartition des pulses.

4.3 L'efficacité angulaire

La taille finie des détecteurs a pour conséquence de faire dépendre la probabilité de détecter un événement de l'angle qui caractérise cet événement. À une dimension, on se convainc aisément que si α est l'ouverture des détecteurs (c'est-à-dire leur longueur caractéristique divisée par leur distance à l'échantillon) la fonction de résolution est triangulaire avec une base de 2α : maximale pour les gamma se propageant antiparallèlement, elle s'annule pour des directions de propagations séparées d'un angle supérieur ou égal à $\pm \alpha$ (figure 4.8). C'est cette fonction que nous définissons comme l'efficacité angulaire.

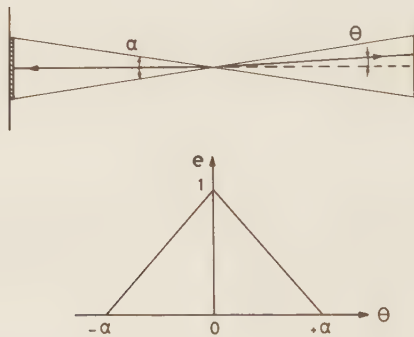


Figure 4.8 : Indication schématique de la fonction d'efficacité angulaire e d'une paire de détecteurs unidimensionnels d'ouverture α

À deux dimensions, l'efficacité angulaire devient une pyramide. Sa base est carrée si les détecteurs sont carrés. Sa pointe est tronquée si un des détecteurs est plus grand que l'autre ou si deux détecteurs identiques sont placés asymétriquement de part et d'autre de l'échantillon (24). Il est indispensable de connaître avec exactitude la forme et la valeur de cette efficacité angulaire afin de compenser les mesures et de les rendre indépendantes de ce paramètre.

Une solution consiste à déterminer cette fonction à partir de la géométrie de l'appareil qui est parfaitement connue.

Une autre solution, un peu plus compliquée, mais nettement plus avantageuse, consiste à mesurer cette fonction. On a alors à disposition une fonction de correction qui contient non seulement l'efficacité angulaire, mais aussi toutes les inhomogénéités qui peuvent provenir d'une variation locale de l'efficacité des détecteurs; cette mesure s'effectue avec une électronique de sélection d'événement sans unité de coïncidence.

Pratiquement nous avons réglé le système de façon à ce que lorsqu'un événement est détecté sur une chambre, un temps arbitrairement long ($5 \mu\text{sec}$) s'écoule avant que l'on autorise la seconde chambre à enregistrer un événement. A partir de là, le traitement de ce couple d'événements est en tout point semblable à celui effectué lors des mesures. Cette calibration a l'avantage d'être rapide puisque d'une part le taux de comptage n'est limité que par la vitesse du traitement des données et d'autre part parce qu'un nombre restreint de paires est suffisant pour construire un histogramme important. En effet, une paire d'angles (θ_x, θ_y) peut être calculée en couplant les coordonnées d'un événement quelconque enregistré sur une chambre avec tous les événements enregistrés sur l'autre chambre. On peut réaliser ainsi N^2 événements à partir de l'enregistrement en anti-coïncidence de N couples de coordonnées.

A l'aide de ce procédé, nous avons réalisé des histogrammes contenant $2 \cdot 10^8$ événements afin que l'erreur introduite par cette procédure de correction soit une faible contribution à l'erreur de mesure. La figure 4.9 représente une telle pyramide de correction.

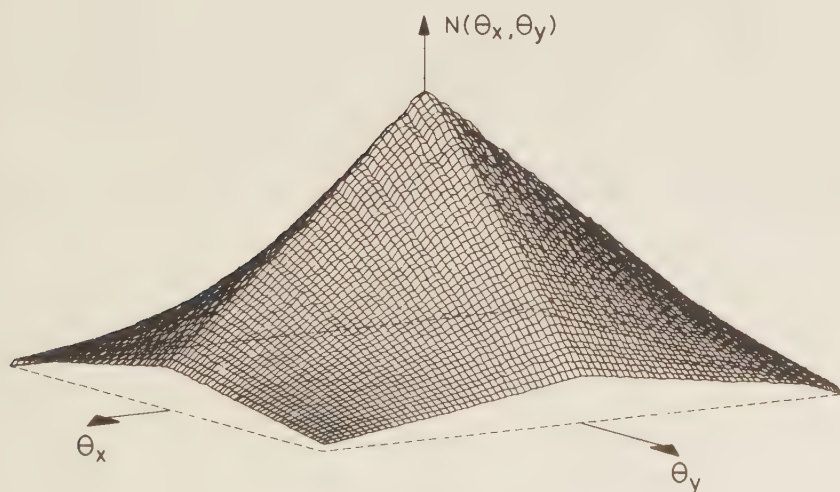


Figure 4.9 : Fonction d'efficacité angulaire de notre appareil mesurée de la façon indiquée dans le texte

4.4 Les histogrammes redondants

Toutes les mesures aboutissent, après traitement de l'information, à un histogramme bidimensionnel dont θ_x , θ_y (les angles résolus), sont les abscisses et le taux de comptage (rendu indépendant de l'efficacité angulaire) est l'ordonnée. Le pas élémentaire des canaux d'histogramme est fixé par la géométrie des détecteurs, par la distance les séparant de l'échantillon, ainsi que par le nombre de bits utilisés lors du traitement. Nous sommes ainsi arrivés à des histogrammes fondamentaux de $(104)^2$ canaux de $0.4 \times 0.4 \text{ mrad}^2$. Cette valeur est inférieure à notre résolution, aussi nous avons construit à partir de ces histogrammes fondamentaux (dont la figure 4.9 est le seul exemple que nous donnerons dans ce travail) des histogrammes dont la largeur des canaux est dans chaque direction angulaire (θ_x et θ_y) un multiple du pas fondamental mais dont la distance entre deux canaux voisins reste la même.

Cette procédure se justifie dans la mesure où l'on obtient des histogrammes dont les canaux sont de l'ordre de grandeur de la résolution du système de mesure (typiquement $0.8 \times 0.8 \text{ mrad}^2$, voir section 4.2) et dont l'erreur statistique attribuée à chaque canal est diminuée d'un facteur $\sqrt{N_x \cdot N_y}$ où N_x et N_y sont les facteurs d'élargissement des canaux par rapport à l'histogramme fondamental.

Et même plus : cette procédure nous permet de choisir à volonté la résolution avec laquelle nous désirons travailler car une grande résolution n'est pas toujours utile. Dans bien des cas, une erreur plus petite est préférable à une très bonne résolution : citons la recherche des processus "umklapp" mentionnés au paragraphe 1.4. Ces processus se traduisent par des variations du taux de comptage qui sont de très faible amplitude mais qui ne sont pas localisés dans des petits domaines d'angles. L'utilisation d'histogrammes redondants se justifie donc dans leur étude, comme dans tous les cas où la structure recherchée n'est pas inférieure au pas de l'histogramme choisi !

Chapitre 5

L'ANNIHILATION DE POSITRONS DANS L'ALUMINIUM

Introduction

L'aluminium est un métal dont les propriétés électroniques sont bien connues et dont la surface de Fermi est quasiment sphérique. Ce métal est donc idéal pour effectuer un test du système de mesure développé. C'est dans cet unique but que nous avons entrepris de mesurer les corrélations angulaires que nous présentons dans le deuxième paragraphe. Auparavant nous rappellerons brièvement les propriétés de l'aluminium qui sont utiles à l'interprétation des mesures et nous mentionnerons les travaux qui ont été fait dans ce domaine. La troisième section de ce chapitre sera consacrée à la discussion des résultats obtenus.

5.1 L'aluminium

L'aluminium est un élément de la colonne III A du tableau périodique. Sa structure électronique est $(\text{Ne}), 3s^2 3p^1$. Sa structure cristalline est cubique face centrée, caractérisée par un paramètre de maille de $4.0\text{\AA}$.

La structure de bande de l'aluminium a été étudiée en détail par Heine (25 - 27) par la méthode des ondes planes orthogonalisées (OPW). Ce calcul met en évidence la sphéricité de la surface de Fermi et de petites déviations par rapport à la sphère au voisinage du point W et de la ligne X de la zone de Brillouin. Harrison (28), puis Ashcroft (29) ont étudié en détail ces déviations et discuté leurs observations par effet de Haas van Alphen. La méthode des fonctions de Green (KKR) a été appliquée à l'aluminium par Segall (30) sur la base du potentiel dérivé par Heine.

L'annihilation de positrons dans l'aluminium a été étudiée plusieurs fois. Citons deux travaux récents.

Tout d'abord celui de S. Wakoh et de ses collaborateurs (31, 32) qui ont utilisé un calcul APW de la structure de bande de l'aluminium pour interpréter des mesures réalisées avec un appareil résolvant une composante angulaire. Les structures fines et les anisotropies des courbes expérimentales vérifient les prédictions théoriques de la surface de Fermi.

Le travail de S. Berko et de ses collaborateurs (33, 34) est plus proche du nôtre puisqu'il s'agit de mesures de corrélations angulaires à deux dimensions effectuées à l'aide de plusieurs scintillateurs appairés. Ces auteurs mettent en évidence la structure de la surface de Fermi de l'aluminium et comparent leurs résultats avec ceux obtenus théoriquement sur la base d'un calcul OPW. Ils mettent aussi en évidence les composantes de grande quantité de mouvement.

5.2 La mesure

La mesure des corrélations angulaires a été effectuée sur un échantillon monocristallin de 12 mm de long et de 1.2 mm de large à température ambiante et pression atmosphérique. Le cristal avait ses faces parallèles aux plans cristallins $[100]$. Ainsi donc les deux composantes d'angles résolues déterminent les composantes $[100]$ et $[010]$ de la quantité de mouvement des paires annihilées. Durant 3 jours, environ 2 millions d'événements furent recueillis avec une résolution géométrique de 0.8 mrad en θ_x par 0.61 mrad en θ_y . La résolution effective de la mesure, c'est-à-dire celle qui tient compte, en plus de la résolution géométrique, du mouvement thermique du positron, est de $0.87 \times 0.73 \text{ mrad}^2$ (les valeurs indiquées représentent la largeur à mi-hauteur de la fonction de résolution).

La mesure obtenue est présentée à la figure 5.1 sous la forme d'un histogramme redondant de $0.8 \times 0.8 \text{ mrad}^2$. Le pas du treilli utilisé pour visualiser la statistique est de 0.4 mrad dans les deux directions. En ordonnée, l'échelle est arbitraire; elle a été choisie de façon à ce que la statistique obtenue ressemble à une demi-sphère car, comme nous l'avons démontré dans l'introduction générale, c'est à cette forme que l'on s'attend dans le cas d'une surface de Fermi sphérique.

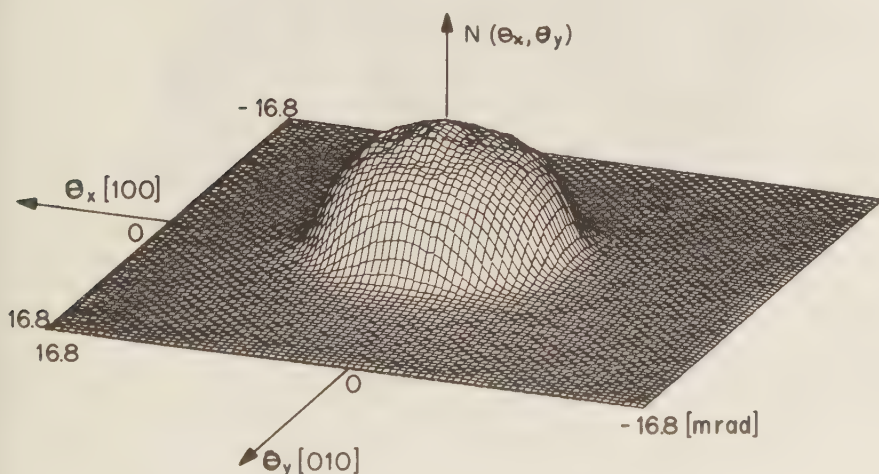


Figure 5.1 : Distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation des positrons dans un monocristal d'aluminium orienté avec l'axe $[100]$ selon θ_x et $[010]$ selon θ_y . Pas du quadrillage : 0.4 mrad

5.3 Analyse et discussion

a. Etude des dérivées

Afin de mesurer le rayon de Fermi dans la plan de mesure ($[100]$, $[010]$), nous avons pris la dérivée partielle du spectre expérimental dans plusieurs directions. Un exemple du spectre dérivé est présenté à la figure 5.2. Il s'agit de la valeur absolue de la dérivée partielle selon x :

$$\left. \frac{\partial N(\theta_x, \theta_y)}{\partial \theta_x} \right|_{\theta_y}$$

Sa valeur en un point est obtenue en prenant la différence entre les valeurs de la fonction au point précédent et au point suivant.

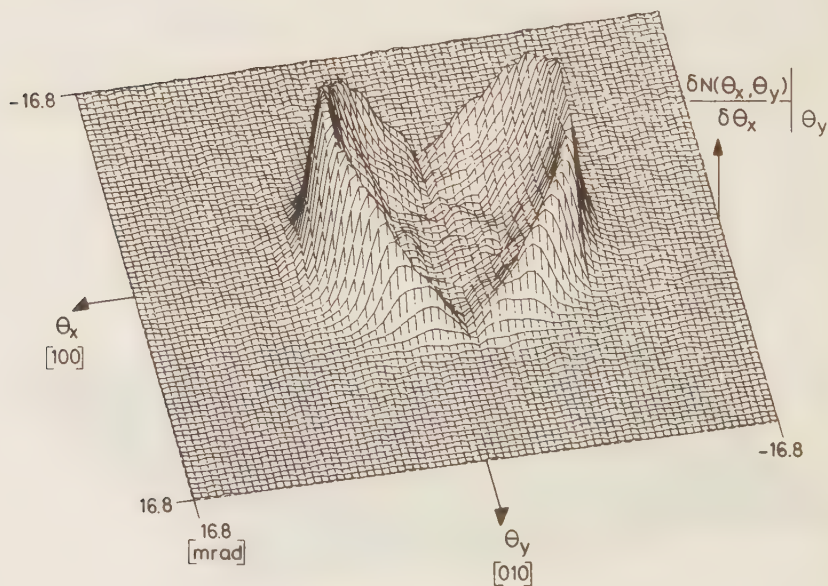


Figure 5.2 : Dérivée partielle selon θ_x de la distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires mesurée dans un monocristal d'aluminium. Pas du quadrillage : 0.4 mrad

Cette dérivée partielle a été calculée pour une série de θ_y distants de 0.4 mrad. Les calculs sur modèle (voir b.) nous ont montrés que le rayon de Fermi pouvait être obtenu de façon fiable au point où la dérivée atteint le 70% de sa valeur maximum. Dans chaque direction de dérivation, le rayon de la sphère de Fermi s'est révélé être le même à l'erreur de mesure près soit $(6.81 \pm 0.05) \cdot 10^{-3}$ mc. Cette valeur est en accord avec celle obtenue par Mader, Berko et leurs co-auteurs (33); elle correspond également à la valeur calculée pour un gaz d'électrons libres ayant la même densité que les électrons de conduction de l'aluminium.

Au cours de cette recherche du rayon de la sphère de Fermi par l'étude des dérivées partielles, il est apparu essentiellement deux difficultés : la première vient du fait que si les effets des correlations électron-positron sont importants et augmentent le taux d'annihilation au voisinage de k_F , le rayon obtenu par l'analyse des dérivées sera légèrement supérieur au rayon réel. Deuxièmement, toutes les dérivées à $mc\theta > k_F$, mais proches de k_F , présentent une variation trop monotone pour être interprétée uniquement par l'effet de lissage dû à la fonction de résolution qui atténue le pic de la dérivée à $mc\theta = k_F$.

Ces deux difficultés nous ont amené à développer un modèle de la mesure afin de pouvoir déterminer le rayon de la sphère de Fermi avec plus de précision.

b. Comparaison de la mesure avec un modèle simple

Ce modèle de la densité des annihilations enregistrées en fonction des angles mesurés que nous appellerons x et y , pour simplifier la notation, a pour base la fonction suivante :

$$f(x, y) = r + c_0 \exp(-(x-x_0)^2 / 2\sigma_x^2) \exp(-(y-y_0)^2 / 2\sigma_y^2) + (f_0 - r - c_0) \cdot (R^2 - (x-x_0)^2 - (y-y_0)^2)^{\frac{1}{2}} \cdot \epsilon(\gamma) \cdot d(1-\gamma)$$

Le premier terme représente le taux de coïncidences fortuites que l'on suppose être constant sur tout le domaine des angles mesurés. Il est représenté par la ligne a sur la figure 5.3 qui schématise des différentes contributions introduites dans le modèle.

Le second terme, contribution b sur la figure 5.3, représente les électrons de coeur. Ils sont décrits par le produit de deux gaussiennes, l'une variant en x avec une ouverture caractérisée par σ_x , et l'autre variant en y caractérisée par σ_y ; c_0 est l'amplitude de la contribution des électrons de coeurs.

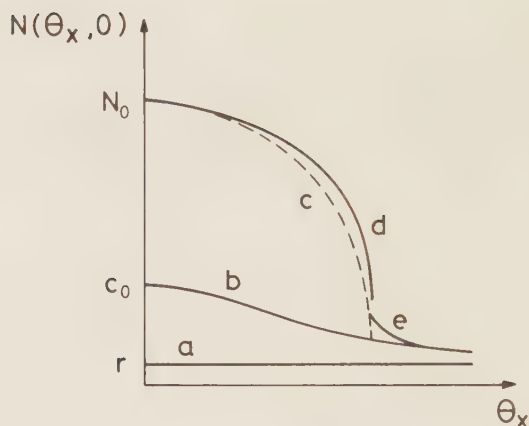


Figure 5.3 : Les différentes contributions à la distribution des corrélations angulaires qui sont introduites dans le modèle développé ici :

- a) coïncidences fortuites,
- b) annihilations avec les électrons de coeur,
- c) annihilations avec les électrons de conduction,
- d) effet des interactions positron-électrons
- e) effet des interactions électrons-électrons

Les électrons de conduction sont représentés par le troisième terme. Son amplitude est calculée de façon à ce que $f(x,y)$ soit normalisé à f_0 . Ce terme s'exprime par le produit d'une fonction représentant la surface de Fermi sphérique centrée en (x_0, y_0) (courbe c sur la figure 5.3) avec deux fonctions de correction : $\varepsilon(r)$ et $d(R-r)$. $\varepsilon(r)$ est la relation (11) du chapitre 1 qui est due à Kahana (12) et représente les interactions électrons-positrons pour $r < R$ (figure 5.3, courbe d). Pour $r > R$, nous avons introduit la fonction $d(R-r)$ dérivée par Daniel et Vosko (35). Ces auteurs ont calculé la distribution $d(k)$ de la quantité de mouvement dans un gaz d'électrons en interaction. Pour $\gamma = k / k_F > 1$, ils donnent le comportement asymptotique suivant (courbe e):

$$d(k) = \alpha \gamma^{-8}$$

La fonction $f(x,y)$ est ensuite convoluée avec la fonction de résolution angulaire $g(x,y)$ pour fournir une distribution théorique de la densité angulaire d'annihilation $N_t(x,y)$:

$$N_t(x,y) = \iint f(x-x', y-y') g(x',y') dx' dy'$$

où

$$g(x,y) = \exp(-x^2/2\tau_x^2) \exp(-y^2/2\tau_y^2),$$

relation dans laquelle τ_x et τ_y sont déterminés par la résolution angulaire de la mesure.

Les paramètres de ce modèle, à savoir Ω , c_0 , σ_x , σ_y , x_0 , y_0 , f_0 , R , α ainsi que b/a et c/a (les coefficients du développement de ε) ont été déterminés par une minimalisation de χ^2 . Cette minimalisation a été effectuée en deux étapes : les coefficients ont d'abord été déterminés approximativement en évaluant le χ^2 sur l'ensemble des points de mesure. Ceci nous a permis de définir le domaine de chacun des paramètres afin que la procédure de minimalisation proprement dite ne diverge pas ou ne converge pas vers un minimum local. Pour la minimalisation finale, nous avons utilisé le programme MINUIT développé au CERN (35). Ce programme offre plusieurs algorithmes de convergence. Nous avons d'abord choisi SIMPLEX, l'algorithme de Nelder et Mead (36) pour cerner le minimum rapidement. L'approche finale du minimum de la fonction χ^2 dans l'hyper-espace des paramètres a été faite avec MIGRAD, l'algorithme de minimalisation à métrique variable de Fletcher (37).

Afin que les temps de calcul ne divergent pas, la minimalisation avec MINUIT (son nom doit vraisemblablement indiquer l'heure moyenne à laquelle sont exécutés les programmes qui font appel à lui !) a été faite sur un quart des points expérimentaux.

Les résultats obtenus sont les suivants :

- Les coïncidences fortuites représentent 2 % du nombre d'événements au pic ($\theta x = x - x_0 = 0$ et $\theta y = y - y_0 = 0$).
- Les électrons de coeur sont décrits par une double gaussienne dont les sigma sont de 7,5 mrad et dont l'amplitude maximale est le 10,3 % du pic.
- Les électrons de conduction sont décrits par une sphère ayant un rayon de 6.78 mrad, résultat qui recoupe celui obtenu par l'analyse des dérivées.
- Les paramètres de Kahana qui décrivent les interactions électrons-positrons au travers de la relation (11) du chapitre 1 ont convergé vers les valeurs suivantes (nous indiquons entre parenthèses les paramètres théoriques calculés par Kahana pour le gaz d'électrons libre en interaction avec un positron) :

$$b/a = 0.132 \quad (0.172)$$

$$c/a = 0.017 \quad (0.116)$$

Ces résultats suggèrent que les interactions électrons-positrons sont, dans l'aluminium, moins fortes que ne le laisse prévoir la théorie de Kahana. Il n'existe pas, à notre connaissance, d'autres résultats expérimentaux pour ces coefficients. Certains auteurs (33) ont remarqué que les calculs qui ne tiennent pas compte de cet effet d'interaction ne suffisent pas pour expliquer leurs mesures, mais ils ne donnent pas pour autant une indication de l'importance du désaccord qu'ils observent.

- Le facteur α qui caractérise les états occupés possédant une quantité de mouvement supérieure à k_F a convergé vers une valeur de 21 % du nombre d'événements au pic. Précisons tout de suite qu'étant donné sa variation en γ^{-8} , le nombre d'annihilations participant à cette contribution est faible. Néanmoins, cette valeur semble élevée et nous amène à penser qu'une fonction moins aigüe à k_F serait plus judicieuse pour expliquer nos données. Kubica et Stewart (1) ont été confrontés à un problème semblable pour interpréter une mesure des corrélations angulaires unidimensionnelles dans la manganèse. Ils ont introduit une composante linéaire décroissante juste au-dessus de k_F afin de reproduire leurs mesures. Une telle variation n'est pas suffisante pour expliquer nos résultats avec précision.

La convergence que nous avons obtenue avec MINUIT correspond à un écart moyen de 1 % entre la fonction théorique convoluée et les points de mesure. La figure 5.4 permet de comparer (localement) le modèle décrit ci-dessus et les points expérimentaux. Cette figure présente une coupe de 0.8 mrad de large effectuée à 1.5 mrad du centre de la distribution, parallèlement à $[100]$.

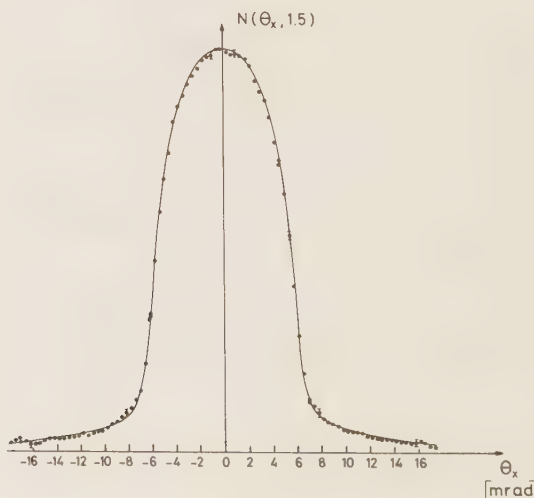


Figure 5.4 : Coupe dans la distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires mesurée pour l'aluminium. Les points représentent les mesures, la courbe, le modèle théorique de la distribution décrit dans le texte. La coupe est centrée à 1.5 mrad du centre de la distribution et a 0.8 mrad de large

Signalons pour terminer que ce calcul a fait apparaître au sommet de la distribution une bosse de 1 mrad de rayon et 3 % d'amplitude. Cette petite composante est attribuée aux annihilations de positrons dans l'air compris entre la source et l'échantillon. Pour éliminer cet effet, les mesures ont ultérieurement été effectuées sous vide.

Chapitre 6

L'ANNIHILATION DE POSITRONS DANS LE CUIVRE

Introduction

Le cuivre est certainement le métal qui a été le plus étudié par annihilation de positrons. Il semble que cet engouement ait une double raison. D'abord le cuivre peut être activé par neutrons thermiques de façon à créer à l'intérieur de l'échantillon une source de positrons : l'isotope ^{64}Cu . Ensuite le cuivre possède la surface de Fermi idéale à étudier au moyen de l'annihilation de positrons : pas trop compliquée, mais quand même dotée de détails fins (les cous), elle a de tout temps été la surface test pour éprouver les développements expérimentaux dans la détection des radiations d'annihilation. En cela nous ne faillirons pas à la tradition ! Oh, non pas par souci de conformisme, mais réellement parce que, au travers de cette étude nous avons pu explorer, affiner et rendre opérationnel le système de mesure développé dans le cadre de ce travail.

Après avoir rappelé les propriétés et les caractéristiques électroniques du cuivre, nous présenterons, dans la deuxième section du présent chapitre, deux mesures effectuées dans des monocristaux d'orientations différentes. La troisième section sera consacrée à l'analyse des résultats obtenus.

6.1 Le cuivre

Le cuivre est un élément de transition dont la structure électronique est $(Ar) 3d^{10} 4s^1$. Sa structure cristalline est cubique face centrée, caractérisée par un paramètre de maille de $3,6 \text{ \AA}$.

Plusieurs calculs de sa structure de bande ont été effectués. Citons ceux de Burdick (38) par la méthode des ondes planes augmentées (APW), de Segall (39) par la méthode KKR et de Fong, Walter et Cohen (40) par la méthode du pseudo-potentiel. Tous mettent en évidence la surface de Fermi bien connue composée d'un corps central d'allure sphérique, entièrement contenu dans la première zone de Brillouin, et dotée dans les directions $[111]$ de 8 "cous" qui touchent les faces de la zone de Brillouin aux points L.

La surface de Fermi du cuivre a été mesurée avec grande précision par la méthode de Haas van Alphen. Sur la base de ces mesures, Garcia Moliner (41) proposa un développement de Fourier décrivant cette surface à partir de 6 coefficients :

$$\begin{aligned}
 W_F = & 3 - \cos \frac{1}{2} a k_y \cos \frac{1}{2} a k_z - \cos \frac{1}{2} a k_x \cos \frac{1}{2} a k_z - \cos \frac{1}{2} a k_x \cos \frac{1}{2} a k_y \\
 & + c_{200} (3 - \cos a k_x - \cos a k_y - \cos a k_z) + \\
 & + c_{211} (3 - \cos a k_x \cos \frac{1}{2} a k_y \cos \frac{1}{2} a k_z - \dots) \\
 & + c_{220} (3 - \cos a k_y \cos a k_z - \dots) \\
 & + c_{310} (6 - \cos \frac{3}{2} a k_x \cos \frac{1}{2} a k_y - \cos \frac{3}{2} a k_x \cos \frac{1}{2} a k_z - \dots) \\
 & + c_{321} (6 - \cos \frac{3}{2} a k_x \cos a k_y \cos \frac{1}{2} a k_z - \dots)
 \end{aligned}$$

Les coefficients de cette expansion furent affinés par Roaf (42), Halse (43), ainsi que par Bosacchi et Franzosi (44). Nous avons utilisé les paramètres que fournissent ces derniers comme étalons. La figure 6.1 présente la surface de Fermi qu'ils décrivent, tournée par rapport aux directions principales de façon à se présenter dans une des positions où nous l'avons mesurée. Cette figure fait apparaître clairement que le corps central est loin d'être sphérique comme on le représente habituellement.

En ce qui concerne l'annihilation de positrons dans ce métal, nous renvoyons à la revue très complète qu'a faite West (10) et nous jugeons inutile de la reproduire ici. Nous mentionnerons néanmoins les travaux du groupe de Berko (34,45) qui sont ultérieurs à la revue de West.

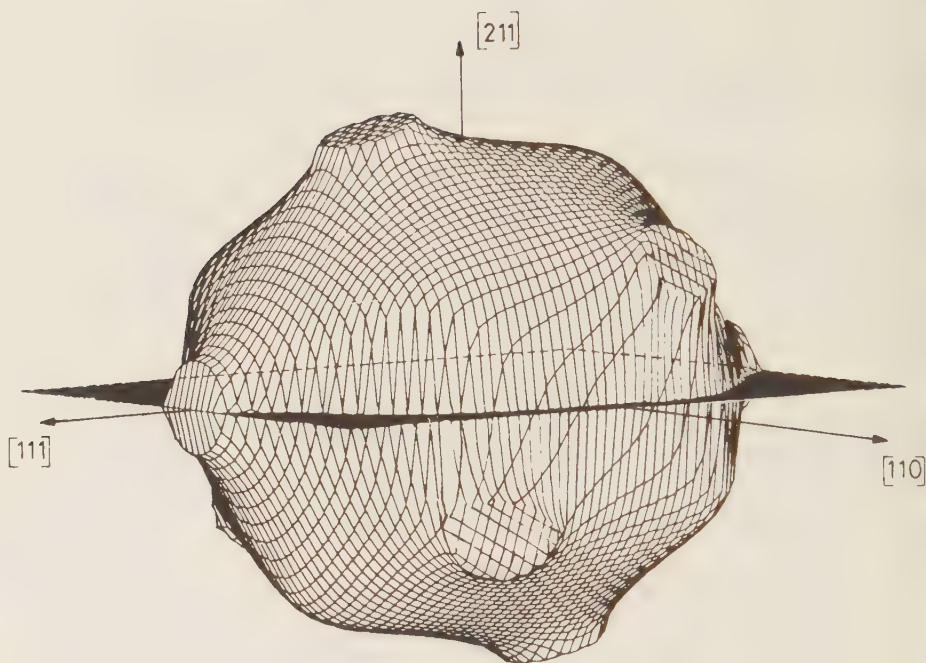


Figure 6.1 : La surface de Fermi du cuivre telle qu'elle est décrite par la relation paramétrique de Halse

6.2 Les mesures

Les deux mesures que nous avons faites ont été réalisées à une température de 77 K sur des échantillons de 0.8 mm de large et 8 mm de long. Il en découle que la résolution géométrique des mesures est de $0.68 \times 0.61 \text{ mrad}^2$ et la résolution effective, c'est-à-dire celle qui inclut le mouvement thermique des positrons est de $0.75 \times 0.67 \text{ mrad}^2$, ce qui en fait les mesures effectuées à ce jour avec la meilleure résolution bidimensionnelle. Les échantillons ont été maintenus sous une faible pression d'hélium gazeux afin de prévenir des annihilations dans le gaz d'échange.

La figure 6.2 indique schématiquement les positions qui ont été choisies pour les deux mesures. Les schémas montrent la zone de Brillouin et la surface de Fermi vues depuis la direction d'intégration. De plus, ces schémas respectent la convention choisie pour définir θ_x et θ_y , les composantes angulaires résolues.

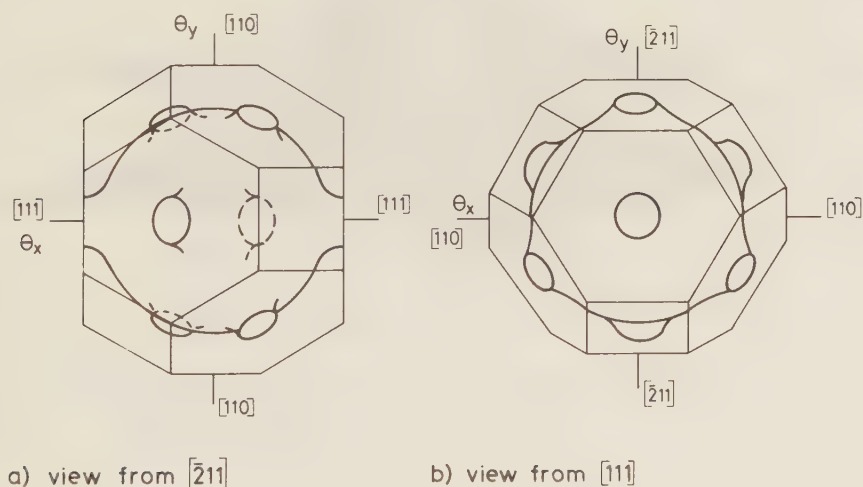


Figure 6.2 : Schéma de l'orientation des monocristaux de cuivre dans lesquels ont été mesurées les distributions bidimensionnelles des corrélations angulaires. θ_x et θ_y indiquent les composantes angulaires qui sont résolues lors de la mesure.

Dans la géométrie de la figure 6.2 a) (que nous désignerons dorénavant par $[\bar{2}11]$), deux cous sont vus en profil à 5.5 mrad du centre de la distribution. Leur observation constitue un test critique pour l'appareillage et c'est cette raison qui nous a induit à choisir cette orientation. Nous avons enregistré $20 \cdot 10^6$ événements lors de cette mesure. Le résultat que nous avons obtenu est représenté à la figure 6.3 par un histogramme redondant de $0.8 \times 0.8 \text{ mrad}^2$. Le pas du treilli utilisé pour visualiser cette statistique est de $0.4 \times 0.4 \text{ mrad}^2$.

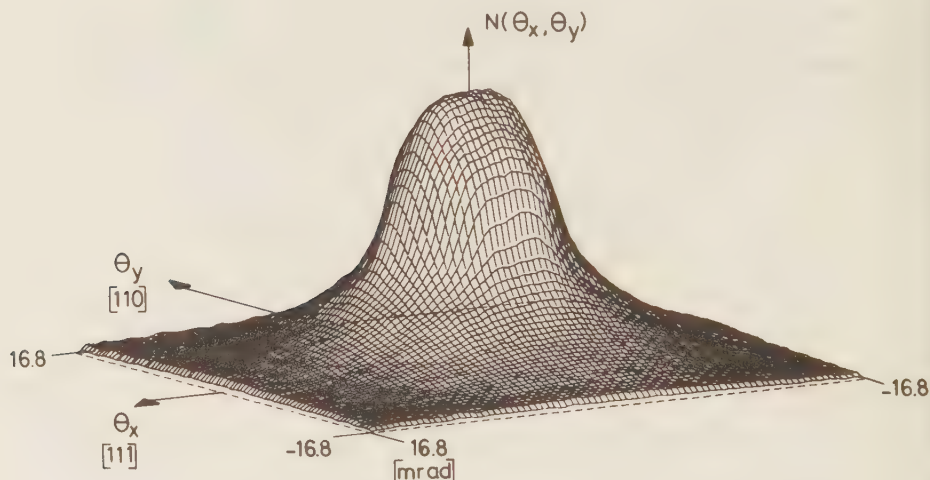


Figure 6.3 : Distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation des positrons dans un monocristal de cuivre dont la direction $[111]$ est selon θ_x et la direction $[110]$ selon θ_y .
Pas du quadrillage : 0.4 mrad

L'orientation de la figure 6.2 b) (qui sera désignée dorénavant par $[111]$) a été choisie afin de mettre très clairement en évidence les deux cus qui se trouvent de part et d'autre de la surface de Fermi à $k = 0$. Dans cette orientation, nous avons enregistré $34 \cdot 10^6$ événements, ce qui a demandé 8 semaines de mesure continue. Nous présentons le résultat obtenu à la figure 6.4 dont les caractéristiques sont identiques à la précédente.

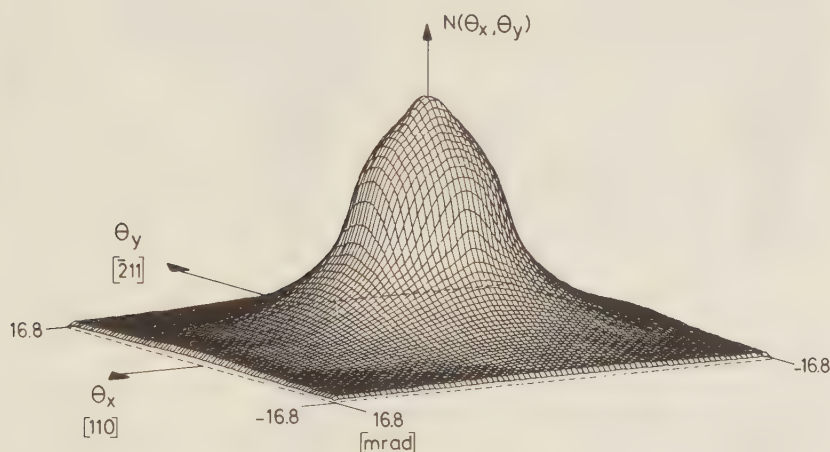


Figure 6.4 : Distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation des positrons dans un monocristal de cuivre dont la direction $[110]$ est selon θ_x et la direction $[211]$ est selon θ_y . Pas du quadrillage : 0.4 mrad

6.3 Analyse et discussion

A. Comparaison avec les résultats de Haas van Alphen

Comme nous l'avons déjà mentionné, la mesure de l'effet de Haas van Alphen a permis de paramétriser la surface de Fermi. Nous avons basé l'analyse de nos mesures sur cette paramétrisation. A partir d'elle, nous avons construit un spectre théorique et l'avons comparé à nos mesures. La plus grande difficulté dans ce travail réside à représenter correctement la partie large du spectre qui a pour origine les annihilations avec les électrons de coeur. Nous discuterons en détail au point C cette partie du spectre, nous voudrions maintenant mettre en évidence la topologie de la surface de Fermi dans nos données.

D'une façon très générale d'abord, on peut comparer les histogrammes mesurés avec ceux obtenus à partir de la surface de Fermi paramétrisée. La figure 6.5 présente le résultat de ce calcul pour les deux orientations mesurées. Les mesures sont aussi reproduites sur cette figure afin de faciliter la comparaison.

La forme très différente du sommet des distributions distingue très nettement les deux orientations. Dans les mesures $[211]$, la crête est allongée dans la direction $[111]$. Ceci est dû à la présence de deux cous dont la projection (voir figure 6.2 a) se situe à $\theta_y=0$ et $\theta_x = \pm 1.6$ mrad. Dans la mesure $[111]$, la distribution présente une bosse bien marquée à $\theta_x=\theta_y=0$. Son origine est aussi la présence de deux cous mais dont la contribution se superpose cette fois, comme le montre la figure 6.2 b).

La figure 6.6 met en évidence la présence des autres cous de la surface de Fermi. Cette figure montre des courbes de niveaux dans les statistiques expérimentales et dans les modèles. On peut voir à l'aide des schémas de la zone de Brillouin qui sont inclus que, pour chacune des directions, la symétrie des lignes de niveaux reflète bien la topologie de la surface de Fermi.

Remarquons qu'à grand angle, les courbes de niveaux expérimentales ne sont pas parfaitement circulaires. Ces déviations sont attribuées aux effets umklapp dont la mise en évidence sera traitée plus loin. Ces effets n'ont pas été introduits dans le modèle et par conséquent les lignes de niveaux correspondantes sont circulaires.

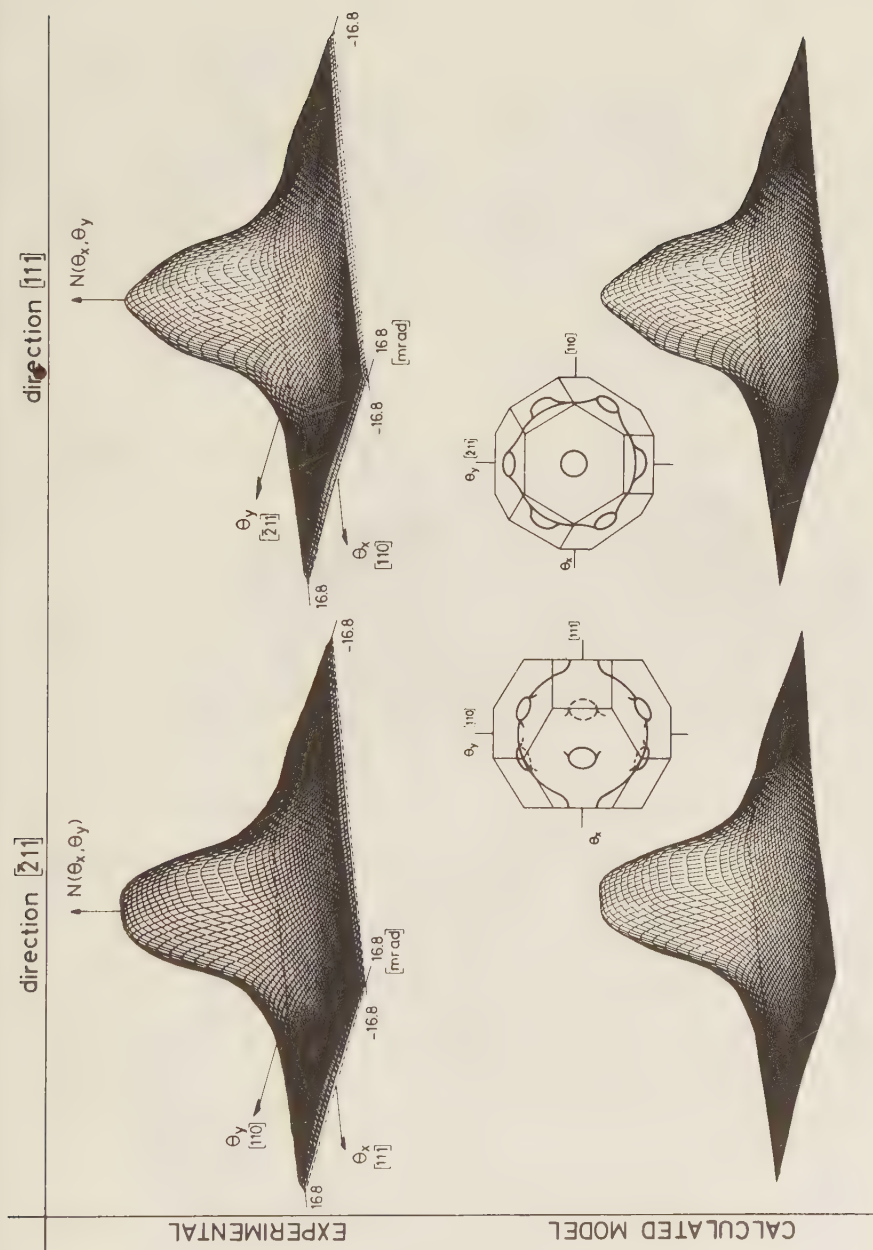


Figure 6.5 : Comparaison des deux distributions de corrélations angulaires mesurées dans le cuivre avec celles d'un modèle construit à partir de la surface de Fermi paramétrisée

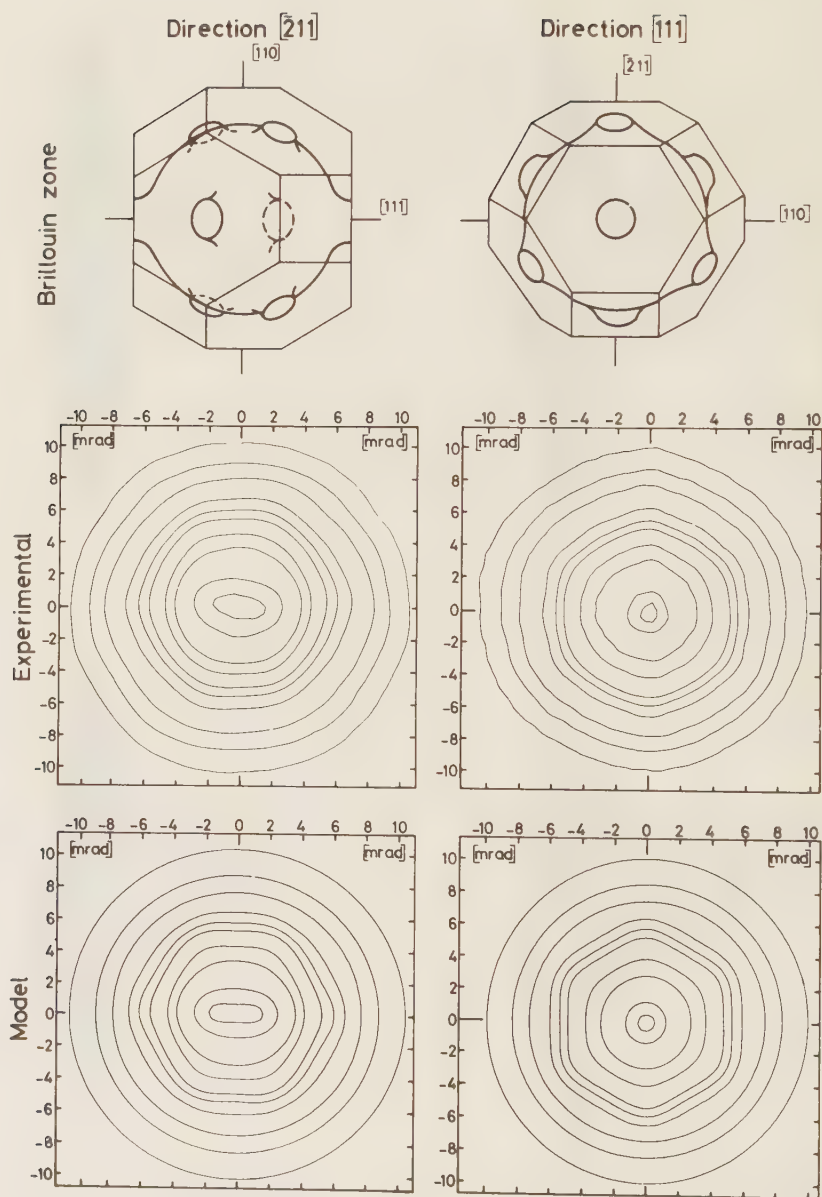


Figure 6.6 : Comparaison, à l'aide de courbes de niveau, des distributions de corrélations angulaires mesurées et calculées sur la base de la surface de Fermi paramétrisée. L'amplitude des distributions est normalisée à 1. Les niveaux sont à 0.99, 0.95, 0.83, 0.75, 0.60, 0.50, 0.40, 0.30, 0.25 et 0.20

B. La dimension des cous

La mesure [111] se prête spécialement bien à la mesure du rayon des cous puisque la superposition des deux cous à $\theta_x = \theta_y = 0$ induit une protubérance qui se traduit par une structure très bien marquée dans la dérivée du spectre expérimental, comme on peut le remarquer sur la figure 6.7. Cette figure montre la valeur absolue de la dérivée partielle du spectre expérimental par rapport à θ_x , pour une série de valeurs de θ_y distantes de 0.4 mrad.

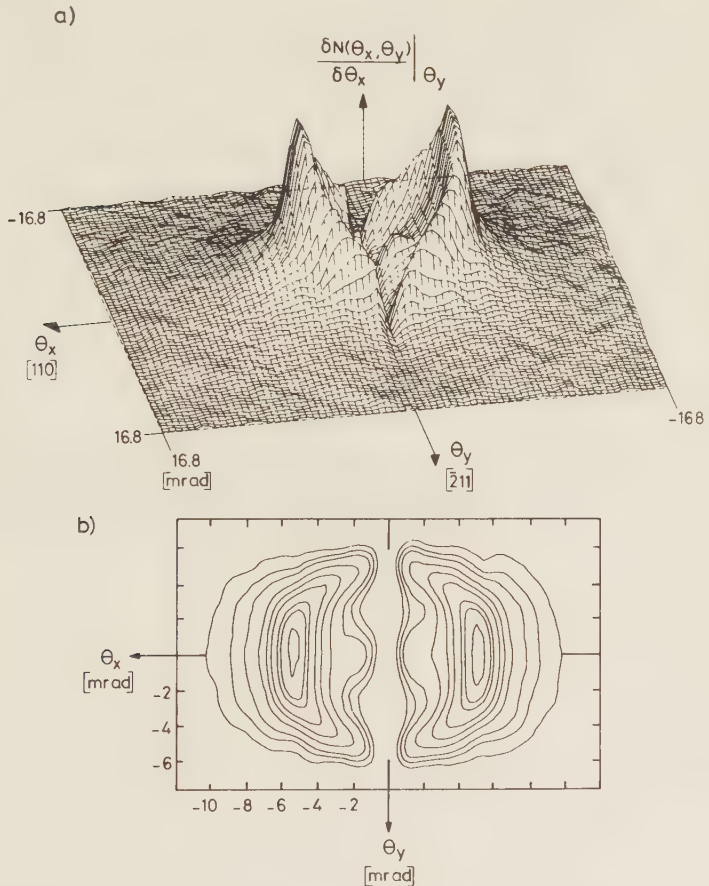


Figure 6.7 : Dérivée partielle selon θ_x ([110]) dans la distribution des corrélations angulaires de la figure 6.4. Sa valeur absolue est présentée

- a) en perspective par un quadrillage dont le pas est de 0.4 mrad,
- b) à l'aide des courbes de niveaux situées à 0.95, 0.83, 0.75, 0.60, 0.50, 0.40, 0.30, 0.25 et 0.20 du maximum

La figure 6.8 montre de façon plus détaillée une de ces dérivées partielles : celle à $\theta_y = 0$. Les points avec $\theta_x < 0$ sont également reportés sur cette figure après avoir inversé le signe de la dérivée. Le rayon du cou que l'on déduit est de 1.0 mrad ($2,73 \cdot 10^{-20}$ gr.cm/sec). Cette valeur est en bon accord avec celle obtenue par Fujiwara et Sueoka (46) et avec celle obtenue par effet de Haas van Alphen (47).

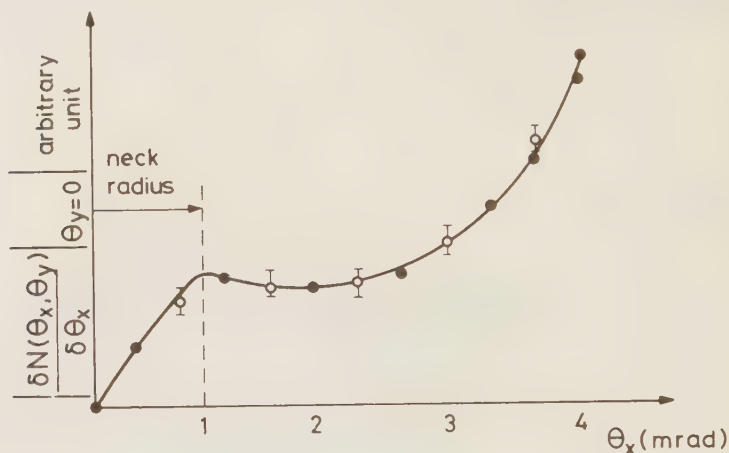


Figure 6.8 : Valeur absolue de la dérivée partielle selon θ_x ($[110]$) dans la distribution des corrélations angulaires de la figure 6.4. Les cercles représentent la dérivée calculée pour une coupe de 0.8 mrad de large centrée à $\theta_y : 0$ mrad. Les cercles pleins correspondent à $\theta_x < 0$

C. Les composantes de grande quantité de mouvement (Processus "Umklapp")

Les processus Umklapp ont, dans l'espace p , la symétrie du réseau réciproque. Ils donnent lieu, comme nous l'avons montré au paragraphe 4 du chapitre 1, à des contributions de faible amplitude centrées à chaque point du réseau réciproque. Etant donné leur faible amplitude (quelques pourcents du pic) et puisqu'ils se situent à des angles importants, pour lesquels l'efficacité angulaire de notre appareil est petite, ils constituent des effets difficiles à observer et exigent une très grande statistique pour être mis en évidence. Nous avons tenté d'observer leur présence dans l'aluminium, mais notre statistique ne suffisait pas et les processus Umklapp ne dépassent pas l'erreur de la mesure. Dans le cuivre par contre, nous avons, pour la mesure dans l'orientation $[\bar{2}11]$, une statistique dix fois meilleure et vingt fois meilleure dans l'orientation $[111]$.

Dans la mesure $[\bar{2}11]$ les processus Umklapp sont visibles si on analyse les lignes de niveau de l'histogramme mesuré. Par contre nous n'avons pas pu les mettre clairement en évidence dans la dérivée. Dans la mesure $[111]$, nous avons pu mettre en évidence leur présence par les courbes de niveau et par les dérivées.

La figure 6.9 présente des courbes de niveaux dans l'histogramme $[\bar{2}11]$. Cette figure se rapproche de la figure

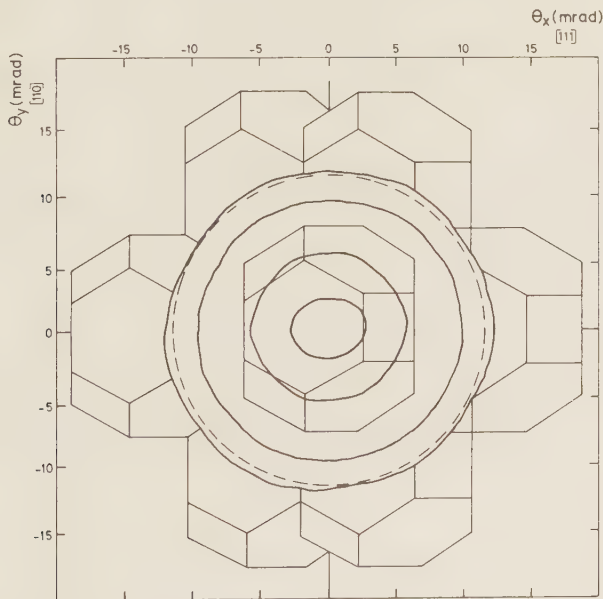


Figure 6.9 : Courbes de niveaux comprises entre 0.04 et 0.95 du point maximum dans la distribution des corrélations angulaires de la figure 6.3. On a superposé les secondes zones de Brillouin afin de mettre en évidence la corrélation entre leurs positions et les déformations des courbes de niveaux situées aux grands angles. Cette déformation est due aux processus Umklapp

6.6, mais nous avons cette fois pris des niveaux plus bas (jusqu'à 5 % du pic) afin d'observer leur forme en dehors de la première zone de Brillouin. Nous avons ajouté sur les courbes de niveaux obtenues les positions des huit premiers voisins, c'est-à-dire les zones de Brillouin qui jouxtent la zone centrale et qui la touchent au point L (le centre des faces hexagonales). On remarque que les lignes de niveaux extérieures ont une symétrie semblable à celle reflétée par les premiers voisins. Si nous faisons l'hypothèse que la contribution des électrons de coeur est isotrope, on peut attribuer aux processus Umklapp les anisotropies des lignes de niveaux que l'on observe.

La figure 6.10 montre, pour la mesure [111], les courbes de niveaux et la position des 6 premiers voisins. Les deux premiers voisins restant se trouvent superposés à la zone de Brillouin centrale et ne contribuent pas aux processus Umklapp à grand angle. Pour cette orientation aussi, les lignes de niveaux reflètent la symétrie du réseau réciproque. La statistique que nous possédons pour cette mesure nous permet en plus de montrer ces processus dans la dérivée de l'histogramme mesuré.

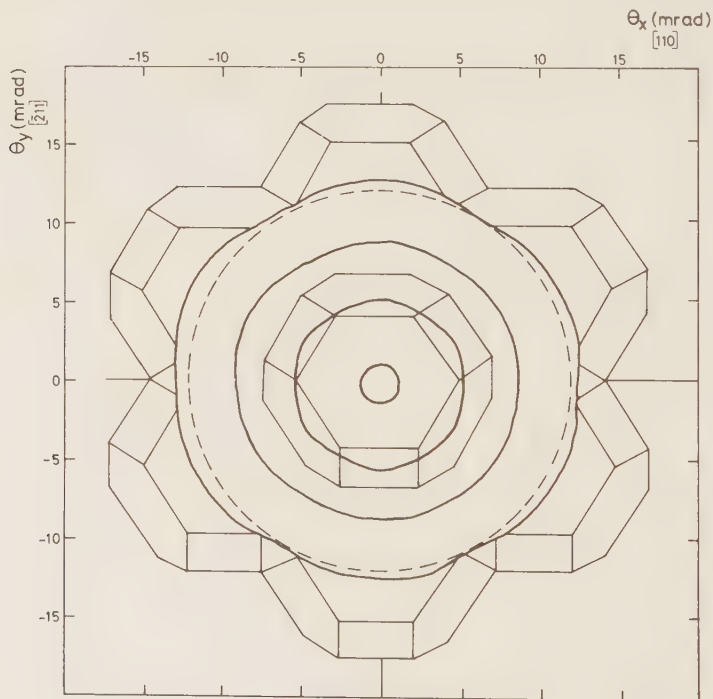


Figure 6.10 : Courbes de niveaux comprises entre 0.04 et 0.95 du sommet dans la distribution des corrélations angulaires de la figure 6.4. On a superposé les secondes zones de Brillouin afin de mettre en évidence la corrélation entre leur position et les déformations des courbes de niveaux situées aux grands angles. Cette déformation est provoquée par les processus Umklapp

La figure 6.11 présente les dérivées partielles selon θ_x et θ_y très fortement amplifiées. En plus des deux croissants centraux (qui sont tronqués pour des raisons évidentes !) on observe, à la périphérie, une série de croissants supplémentaires. Ceux-ci sont particulièrement bien marqués là où la pente n'est pas trop forte. Ces croissants sont les pics de dérivée dus aux processus Umklapp qui reproduisent la surface de Fermi dans l'espace p . Ils sont centrés à

$$\theta_x = 5.5 \text{ mrad et } \theta_y = \pm 9.6 \text{ mrad}$$

pour quatre d'entre eux et à

$$\theta_x = \pm 11 \text{ mrad et } \theta_y = 0 \text{ mrad}$$

pour les deux autres. Ces valeurs correspondent effectivement à la projection dans le plan de détection des zones de Brillouin adjacentes à la zone centrale.

D. Les électrons de coeur

À l'aide d'un calcul semblable à celui que nous avons décrit pour expliquer nos mesures d'annihilation de positrons dans l'aluminium, nous avons tenté de trouver une relation simple qui décrive les annihilations avec les électrons de coeur dans le cuivre. Le modèle pour le cas présent a été construit à partir de trois contributions au spectre expérimental :

- les coïncidences fortuites dont la distribution est supposée constante sur tout le domaine de mesures,
- les électrons de conduction représentés par la relation paramétrique donnée au paragraphe 1. Nous n'avons pas introduit de facteur de réhaussement pour les interactions électrons-positron car nous ne disposons pas d'un modèle propre pour décrire ces interactions dans le cas des électrons à caractère d ; le calcul de Kahana (12) que nous avons appliqué pour l'aluminium a été fait pour des électrons libres.
- les électrons de coeurs. Nous avons d'abord tenté de décrire ces derniers par une composante gaussienne de symétrie cylindrique, mais aucune convergence n'a été obtenue. Si une telle fonction est à même de décrire les électrons de coeurs pour les angles supérieurs à 10 mrad, il n'en est pas de même aux angles compris entre 4 et 10 mrad où les taux de comptage sont supérieurs à ceux que l'on peut reproduire avec une gaussienne.

Pour améliorer la convergence, nous avons imaginé un modèle à deux composantes :

- une gaussienne placée sur le centre (x, y) de la distribution :

$$c_1 \exp(- (x-x_0)^2 / 2\sigma_x^2) \exp(- (y-y_0)^2 / 2\sigma_y^2)$$

- une couronne dont la coupe axiale est gaussienne :

$$c_2 \exp(- (r-r_0)^2 / 2\sigma_r^2)$$

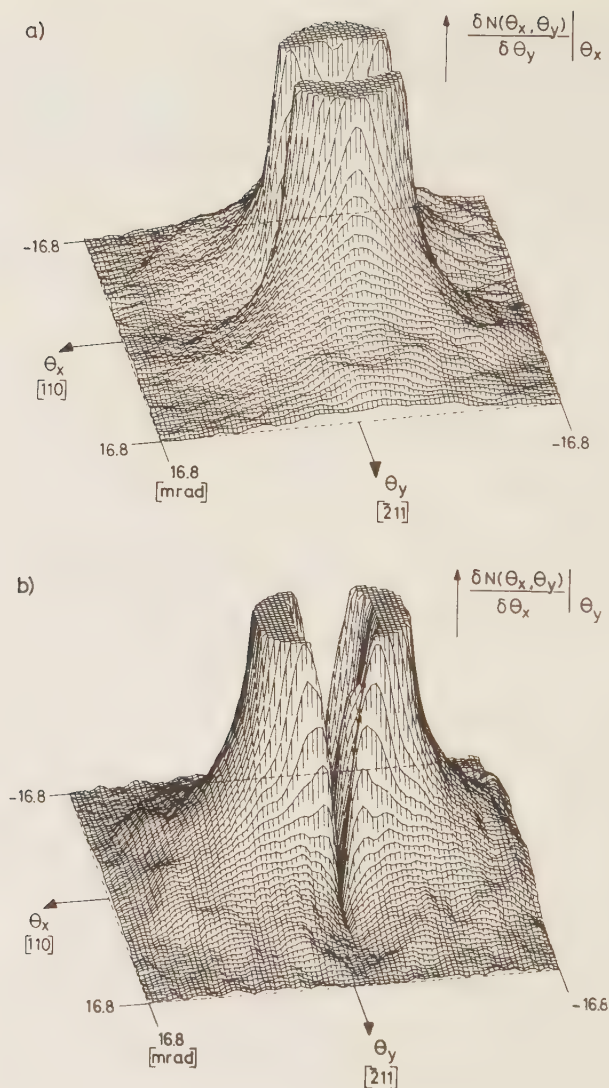


Figure 6.11 : Amplification des dérivées partielles calculées dans la distribution des corrélations angulaires de la figure 6.4.

- a) Valeur absolue des dérivées partielles à θ_x constant
- b) Valeur absolue des dérivées partielles à θ_y constant. Pour a) et b) le pas du quadrillage est de 0.4 mrad. On observe nettement des pics secondaires dans la dérivée. Ces pics sont la manifestation des processus Umklapp. Ils sont répartis selon la symétrie du réseau réciproque.

où r_0 est le rayon vecteur pointant le centre de la couronne. Ce modèle permet de reconstituer le spectre expérimental avec une plus grande précision que le premier. Néanmoins, l'accord obtenu ne nous autorise pas à dire qu'il s'agit là du modèle adéquat. Le résultat obtenu suggère qu'un meilleur accord serait obtenu avec une couronne dont la coupe radiale ne serait pas une fonction symétrique, mais une fonction qui soit plus étalée vers l'extérieur de la couronne que vers l'intérieur.

Nous avons tout de même utilisé cette approximation pour construire les spectres modèles que nous avons utilisés au point A pour mettre en évidence la manière dont apparaît, dans nos mesures, la topologie de la surface de Fermi.

Les valeurs qui se dégagent des calculs que nous avons effectués sont identiques pour les deux orientations. Avec les marges d'erreur importantes que l'on peut noter, nous avons trouvé :

$$c_1 = 40 \pm 2 \% \text{ du pic}$$

$$\sigma_x = \sigma_y = (7.5 \pm 3) \text{ mrad}$$

$$c_2 = (9 \pm 2) \% \text{ du pic}$$

$$\sigma_r = (0.72 \pm 0.008) \text{ mrad}$$

$$r_0 = (5.6 \pm 0.4) \text{ mrad}$$

L'allure schématique de cette distribution est présentée à la figure 6.12.

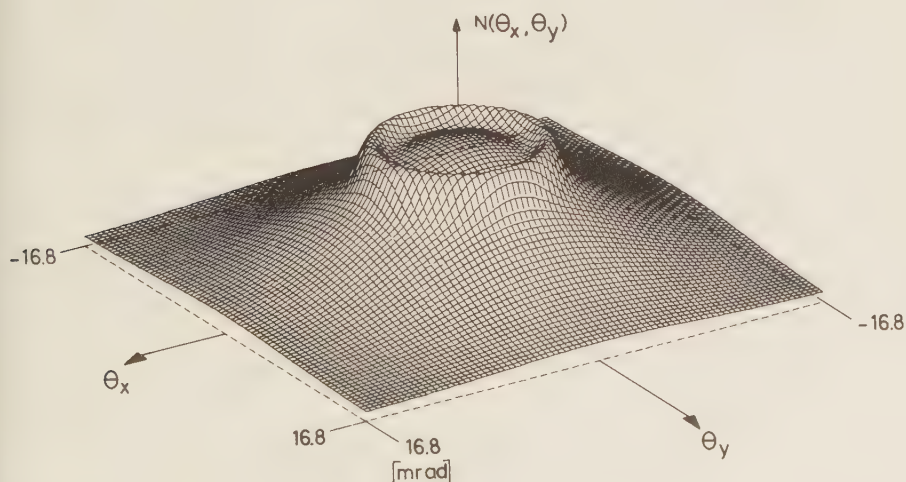


Figure 6.12 : Modèle de la contribution des électrons de coeur à la distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires dans le cuivre

En fait, la difficulté que nous avons à décrire la contribution des électrons de coeur est très révélatrice : elle démontre de façon flagrante qu'aussi bon que soit le système de détection des radiations d'annihilation dont on dispose, il ne contribuera guère à la "fermiologie" s'il n'est complété par la possibilité d'interpréter les données obtenues à partir de calculs de structure de bande. Pour autant que l'approximation des particules indépendantes soit suffisamment proche de la réalité, la distribution d'impulsion des paires de photons peut être calculée, rappelons-le, à partir des fonctions d'onde de positrons et d'électrons.

Afin de comparer la distribution de densité d'impulsion que nous avons obtenue pour les électrons de coeur avec les résultats d'autres chercheurs, nous avons simulé, à la fois pour nos mesures et pour la distribution théorique, le résultat $N(\theta_x)$ d'une mesure unidimensionnelle. Le calcul est évident :

$$N(\theta_x) = \int_{-\infty}^{+\infty} N(\theta_x, \theta_y) d\theta_y$$

La figure 6.13 montre la mesure $[\bar{2}11]$ intégrée selon $[110]$ et l'intégrale du modèle des électrons de coeur.

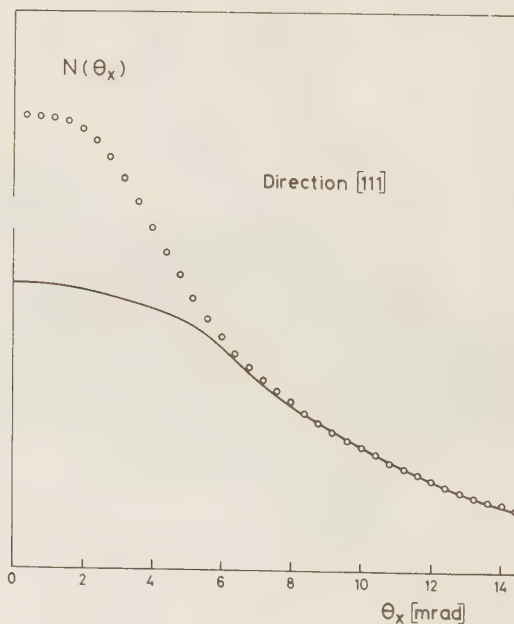


Figure 6.13 : Simulation de la distribution unidimensionnelle des corrélations angulaires dans la direction $[111]$ du cuivre à partir de notre mesure (cercles) et à partir du modèle pour la contribution des électrons de coeur (trait continu)

Ces résultats sont en bon accord avec ceux de Rozenfeld et co-auteurs (48), qui extrapolent la contribution des électrons de coeurs aux petits angles par une gaussienne intersectant l'axe des ordonnées à 58 % du taux de comptage maximum.

Dans notre estimation, la contribution aux électrons de coeur à $\theta_x = 0$ est de 62 %. L'erreur est estimée à 2 %. Si en valeur absolue cette valeur est moins précise que celle dérivée de mesures unidimensionnelles, il faut néanmoins relever que notre procédure de minimalisation à deux dimensions, dont cette valeur est dérivée, est certainement une meilleure approximation que l'extrapolation de la queue des distributions unidimensionnelles vers $\theta_x = 0$ par une gaussienne. Notre résultat met d'ailleurs très nettement en évidence la nature non gaussienne de la distribution d'impulsion des paires de photons provenant de l'annihilation de positrons avec les électrons des couches internes (principalement de la couche 3 d).

Ce résultat va d'ailleurs dans le sens de ceux obtenus par Berko et Plaskett (49), Senicki et co-auteurs (50,51). Berko et Plaskett ont calculés la densité d'annihilation de positrons avec les électrons de la couche M à partir des fonctions d'ondes d'électrons données par Hartree (52, 53). Ils obtiennent une distribution très semblable à celle que nous donnons à la figure 6.13. Senicki et co-auteurs utilisent la méthode des liaisons fortes pour décrire les électrons des couches internes et introduisent dans leur calcul une fonction d'onde de positron ayant la bonne symétrie cristalline. Ils l'évaluent en exprimant cette fonction d'onde par une superposition d'ondes planes, en la substituant dans l'équation de Schrödinger et en résolvant pour les coefficients de Fourier du développement. Ils calculent ensuite la distribution d'impulsion pour une détection "ponctuelle", c'est-à-dire pour une résolution de 1.5 mrad ayant une symétrie cylindrique. Leur résultat a la même allure qu'une coupe radiale dans la figure 6.12. On peut la représenter schématiquement par une contribution large augmentée d'une contribution localisée entre 4 et 10 mrad.

On voit donc apparaître une certaine cohérence dans l'annihilation de positrons avec les électrons de coeur dans le cuivre. Les calculs qui ont été faits montrent à l'évidence que cette composante des spectres d'annihilation a une structure angulaire et d'autre part notre estimation, basée sur un modèle empirique, exclut une distribution gaussienne.

E. Les correlations électron-positron dans le cuivre

Les effets des correlations électrons-positron sont en fait très mal connus actuellement. Le travail de Kahana (12) nous donne une idée de leur influence sur les distributions angulaires des paires de photons émises lors de l'annihilation de positrons avec des électrons libres. Nous n'avons aucune connaissance de leur importance dans le cuivre où les états électroniques de la bande de conduction ne sont pas purement s, mais ont (notamment près des cous) un caractère d. Comme le dit J. Melngailis du MIT (54) "What the enhancement (due to many body electron-positron correlation) might be for the necks is open to question".

Nous n'avons pas tenu compte de tels effets dans notre modèle de spectre et dans le calcul de la contribution des électrons de coeur. Mais on ne peut pas à priori exclure leur présence. Par contre, nous avons cherché à les faire apparaître. Pour y parvenir, nous avons simplement soustrait de nos distributions expérimentales ce qui, dans notre modèle, correspond à la contribution de la surface de Fermi paramétrisée. Ce qui reste donc est imputable aux électrons de coeur et aux effets de correlations. Le résultat obtenu pour l'orientation $[211]$ est présenté à la figure 6.14. Un résultat tout à fait semblable est observé pour la mesure $[111]$.

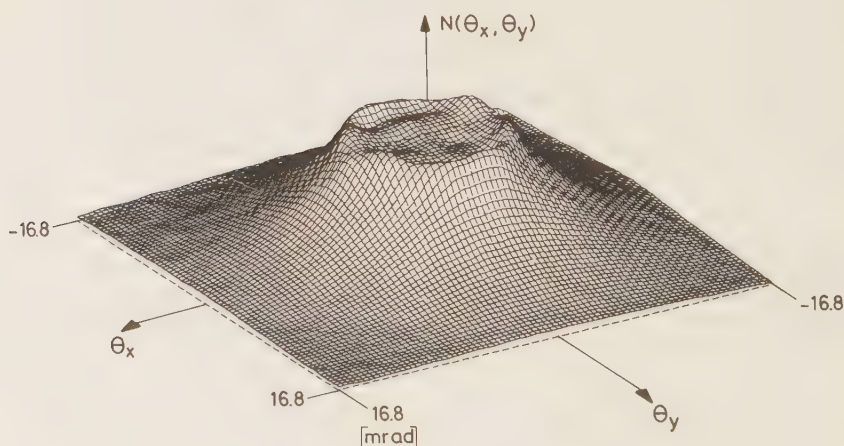


Figure 6.14 : La distribution expérimentale des correlations angulaires de la figure 6.3 après soustraction de la contribution de la surface de Fermi décrite par la relation paramétrique de Halse

On observe une distribution assez semblable à celle de la figure 6.12, à savoir une composante large de type gaussien surmonté d'une couronne plus étroite. Ce qui différencie cette distribution de celle calculée est les fluctuations que l'on observe. On observe que ces fluctuations marquent la position des cous par des renforcements.

Cette observation suggère une anisotropie des corrélations électrons-positron. Il semble qu'au niveau des cous l'effet de rehaussement que provoque ces corrélations soit plus faible que dans le reste de la surface de Fermi. Soulignons que c'est, à notre connaissance, la première fois qu'une telle anisotropie est mise en évidence.

Cette analyse met également en évidence la difficulté de faire la part entre contribution des électrons de coeur et effet des corrélations électrons-positron. Il n'est pas exclu qu'une partie de la couronne que nous avons attribuée aux électrons de coeur revienne en fait aux corrélations électrons-positron et électrons-électrons. Les calculs théoriques de Senicki et collaborateurs nous suggèrent que la couronne vient des électrons de coeur, mais un calcul plus détaillé des effets de corrélation serait utile pour clarifier la situation.

Chapitre 7

L'ANNIHILATION DE POSITRONS DANS LE V_3Si Introduction

Parmi les nombreux composés intermétalliques qui possèdent la structure cristalline A-15 (β -tungsten), beaucoup d'entre eux possèdent d'intéressantes propriétés supraconductrices. Le V_3Si est un composé typique de cette classe de matériaux. Nombre de ses propriétés ont été étudiées; pour leur discussion, nous renvoyons à l'excellente revue de M. Weger et I.B. Goldberg (55), nous nous contenterons dans la première section de relever les divers calculs de la structure de bande qui ont été entrepris dans les A-15 et de présenter les résultats déjà obtenus dans le V_3Si par annihilation de positrons. Dans la deuxième section, nous décrirons la mesure que nous avons effectuée sur un monocristal en résolvant les composantes angulaires dans les directions $[100]$ et $[010]$. Nous discuterons cette mesure dans la troisième section.

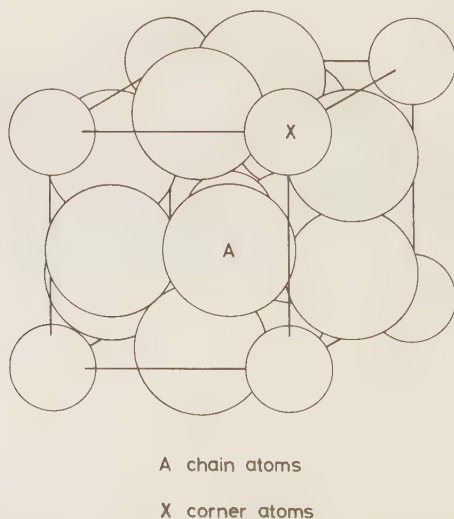


Figure 7.1 : Disposition des atomes dans la maille de la structure A-15

7.1 Le composé intermétallique V_3Si

Ce composé est caractérisé par une température de transition supraconductrice de 16.8 K. En plus de cette propriété remarquable, le V_3Si , comme d'une façon générale tous les A-15, possède des anomalies dans ses propriétés électroniques et élastiques. Ces anomalies se manifestent par une forte dépendance en température de propriétés telles que le coefficient γ de la chaleur spécifique électronique, la susceptibilité magnétique, le Knight-shift, le "softening" de certaines constantes élastiques lorsque la température est réduite, ce qui se prolonge dans certains A-15, et dans le V_3Si en particulier, par une transformation martensitique vers la phase tétragonale.

Ces anomalies ont été attribuées par Clogston et Jaccarino (56) à un pic étroit dans la densité d'état, situé juste au niveau de Fermi. Très tôt, le modèle des chaînes linéaires a été pris en considération pour expliquer ce pic. Suggéré par Weger (57), le modèle des chaînes linéaires fait intervenir la structure cristalline des A-15. De composition A_3B , cette phase a la symétrie cubique : les atomes A sont disposés selon trois chaînes qui se développent sans se croiser dans les directions des arêtes du cube, mais en passant par le centre des faces. Sur ces chaînes, les atomes sont distants de $a/2$ où a est le paramètre de maille (figure 7.1). Cette structure fait que la distance entre atomes A de chaînes différentes est toujours 20 % supérieure à la distance séparant les atomes A d'une même chaîne. En première approximation, si l'on ne considère que les interactions entre plus proches voisins, les chaînes sont découplées, les fonctions d'onde électroniques sont localisées sur une famille de chaînes seulement et les surfaces à énergie constante sont planes, perpendiculaires aux axes de coordonnée.

Labbé et Friedel (58-60) ont aussi analysé le modèle des chaînes linéaires. Ils montrent que, pour les chaînes indépendantes, la bande d est décomposée en 5 sous-bandes indépendantes, lorsqu'on néglige les effets de champ cristallin. Ce modèle conclut à une densité d'état possédant des divergences en $E^{-1/2}$. Ce fait se traduit par une anomalie élastique à $q = 0$. C'est à celle-ci que l'on attribue le softening des constantes élastiques et la transformation martensitique.

Weger et Goldberg ont développé le calcul de bande de ce modèle dans l'approximation des liaisons fortes. Dans un premier temps (56-61), ils ont introduit dans leur calcul les atomes B situés aux coins et au centre de la maille cubique et ont considéré les bandes indépendantes (IBA : independent band approximation) sauf la bande $3d-\delta_1$ des atomes A qui se mélange très fortement avec la bande p des atomes B car les lobes des fonctions d'ondes de ces états pointent dans la même direction et se recouvrent fortement.

Dans cette approximation où l'on considère donc m_l comme un bon nombre quantique, la bande σ ($m_l = 0$; d_{z^2} pour les chaînes dans la direction z) est constituée d'orbitales dont les lobes sont le long des chaînes. Par conséquent, cette chaîne ne devrait être que peu affectée par les chaînes perpendiculaires et donner lieu à des portions planes dans la surface de Fermi. La bande δ_2 (d_{xy}) a un pic important dans la densité d'état. Ce pic, qui est dû aux états de symétrie Γ_{25}' , M_5 , X_3 , se situe au voisinage de la surface de Fermi. La bande δ_1 est au-dessus du niveau de Fermi, la bande p du Si est au-dessous. La bande π a une structure assez compliquée. Elle est très large en comparaison de la bande δ_2 . Sa contribution à la densité d'état se caractérise par un pic au niveau de Fermi, ce pic est dû à l'état M_{10} .

Ce modèle de la structure de bande du V_3Si a été utilisé avec un certain succès pour expliquer diverses observations expérimentales. Relevons notamment le travail de Buttet et Lauger (62) concernant la résonance acoustique nucléaire.

Barak, Goldberg et Weger (63) ainsi que Goldberg (64) ont affiné le modèle de chaînes linéaires en introduisant, dans cette dernière étape, les couplages interchaînes (CBA : Coupled chains approximation). D'une façon générale, ces calculs confirment les précédents. Ils donnent quelques éclaircissements à propos de la bande π ($m_l = 1$; d_{xz} , d_{yz}) dont la contribution à la densité d'état à E_F se trouve confirmée. La question des portions planes de la surface de Fermi provenant de la bande σ a été réexaminée : s'il est établi qu'elles peuvent exister, il est montré qu'elles dépendent de façon critique de l'hybridation de σ avec la bande $4p$ des atomes B.

La structure de bande des A-15 a aussi été étudiée par la méthode APW. Mattheiss (65) a effectué ce calcul. D'ailleurs c'est à partir de ce résultat que les niveaux aux points de haute symétrie du calcul IBA ont été fixés dans l'échelle des énergies. Dans son calcul, Mattheiss fait l'hypothèse du potentiel sphérique à l'intérieur des sphères muffin-tin. Si cette hypothèse se justifie pour les structures de haute symétrie (hexagonale compacte, cubique face-centrée ...), on peut se demander si elle est suffisante dans le cas des atomes situés sur des chaînes linéaires. Récemment, Van Kessel, Myron et Mueller ont effectué le calcul APW en introduisant la bonne symétrie dans le potentiel muffin-tin (66-67). Le résultat de ce calcul, réalisé avec une grande précision, montre que les bandes associées à l'état Γ_{12} sont plus plates que celles obtenues par Mattheiss. La surface de Fermi telle qu'elle apparaît d'après le calcul de Van Kessel, Byron et Mueller semble assez compliquée. Deux éléments semblent s'en dégager : une série d'ellipsoïdes centrés à M, un volume d'allure parallélépipédique centré à Γ (voir figure 7.2).

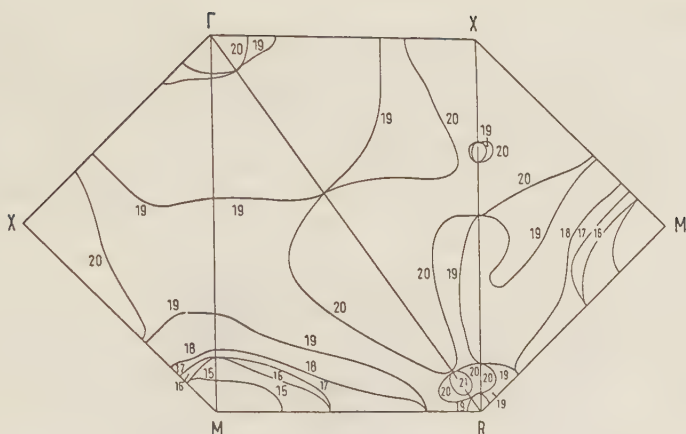


Figure 7.2 : La surface de Fermi dans les A-15; ici le Nb_3Sn , (référence 67)

Trois mesures d'annihilation de positrons dans le V_3Si ont été publiées : deux mesures unidimensionnelles (68, 69, 70, 71) et une mesure pseudo bidimensionnelle (72).

La première mesure a été réalisée par Berko et Weger (68, 69) qui ont mesuré les corrélations angulaires de la radiation d'annihilation avec un appareil du type "long slit" dans les trois directions principales $[100]$, $[110]$ et $[111]$. Leur mesure dans la direction $[100]$ montre deux pics dans la dérivée (calculée avec les différences du taux de comptage). Ces pics se trouvent situés, dans la première zone de Brillouin, à $\sim 0.3 \pi/a$ et $0.8 \pi/a$. En analysant la dérivée du spectre, calculée en ajustant, par les moindres carrés, un polynôme d'ordre 3 entre 4 points successifs, un troisième pic de faible intensité apparaît à $0.6 \pi/a$.

La seconde mesure unidimensionnelle a été réalisée par Samoilov et Weger (70, 71) dans la direction $[100]$. Elle fait apparaître les trois pics dans la dérivée, le pic à $0.6 \pi/a$ étant d'une intensité supérieure à celle obtenue par Berko et Weger. L'analyse de cette mesure a été faite à l'aide du modèle IBA des chaînes linéaires. Le pic situé à $0.8 \pi/a$ est attribué à des sections planes dans la surface de Fermi de la bande σ des électrons 3d du vanadium et en même temps à une certaine contribution de la bande δ_1 -p. Cette bande serait à l'origine du pic situé à $0.6 \pi/a$. Quant au pic à $0.3 \pi/a$, il est attribué à la bande δ_2 .

La troisième mesure de l'annihilation de positrons dans le V_3Si a été réalisée par Berko et Mader (72) avec une résolution bidimensionnelle de $0.8 \times 1.2 \text{ mrad}^2$ et pour quelques valeurs de θ_y seulement. A ce jour, aucune analyse de cette mesure n'a été publiée.

7.2 La mesure

La mesure bidimensionnelle des corrélations angulaires dans la radiation d'annihilation des positrons que nous avons effectuée à 77K dans la V_3Si l'a été sur un monocristal parallélipédique de $0.8 \times 8 \times 3 \text{ mm}^3$ dont les faces ont été taillées parallèlement aux axes $[100]$, $[010]$ et $[001]$. Il nous a semblé important de commencer à mesurer une substance dont la structure de bande et la surface de Fermi est aussi compliquée, dans une orientation caractérisée par une haute symétrie de façon notamment à pouvoir observer à double (et même 4 fois) toute structure fine afin de pouvoir l'attribuer sans ambiguïté à autre chose qu'à du bruit. C'est pourquoi nous avons choisi de mesurer les corrélations angulaires dans le plan $[100]$, $[010]$ qui possède une symétrie d'ordre 4 pour les réseaux cubiques. Nous avons acquis $6 \cdot 10^6$ événements avec une résolution géométrique de $0.69 \times 0.61 \text{ mrad}^2$ et une résolution effective (qui tient compte du mouvement thermique des positrons) de $0.75 \times 0.68 \text{ mrad}^2$. La statistique dont nous disposons est relativement petite, aussi utiliserons-nous, ici plus qu'avant, les histogrammes redondants pour l'analyser.

La mesure obtenue est présentée à la figure 7.3 avec un histogramme de $1.2 \times 1.2 \text{ mrad}^2$, visualisé par un treillis dont le pas est de 0.4 mrad .

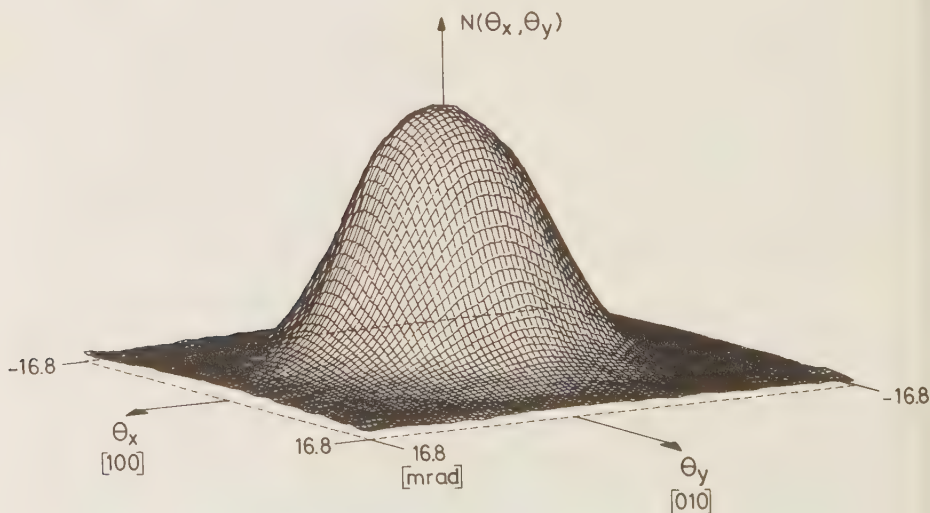


Figure 7.3 : Distribution bidimensionnelle des corrélations angulaires de la radiation d'annihilation des positrons dans un monocristal de V_3Si dont la direction $[100]$ est selon θ_x et $[010]$ selon θ_y . Pas du quadrillage : 0.4 mrad .

7.3 Analyse et discussion

Nous avons basé toute l'analyse de la mesure sur l'étude des dérivées partielles de la distribution des corrélations angulaires que nous avons obtenue. Nous montrons à la figure 7.4 la valeur absolue des dérivées partielles à θ_x et à θ_y constants. Ces dérivées ont été calculées en chaque point en prenant la différence entre la valeur de la fonction au point précédent et la valeur de la fonction au point suivant.

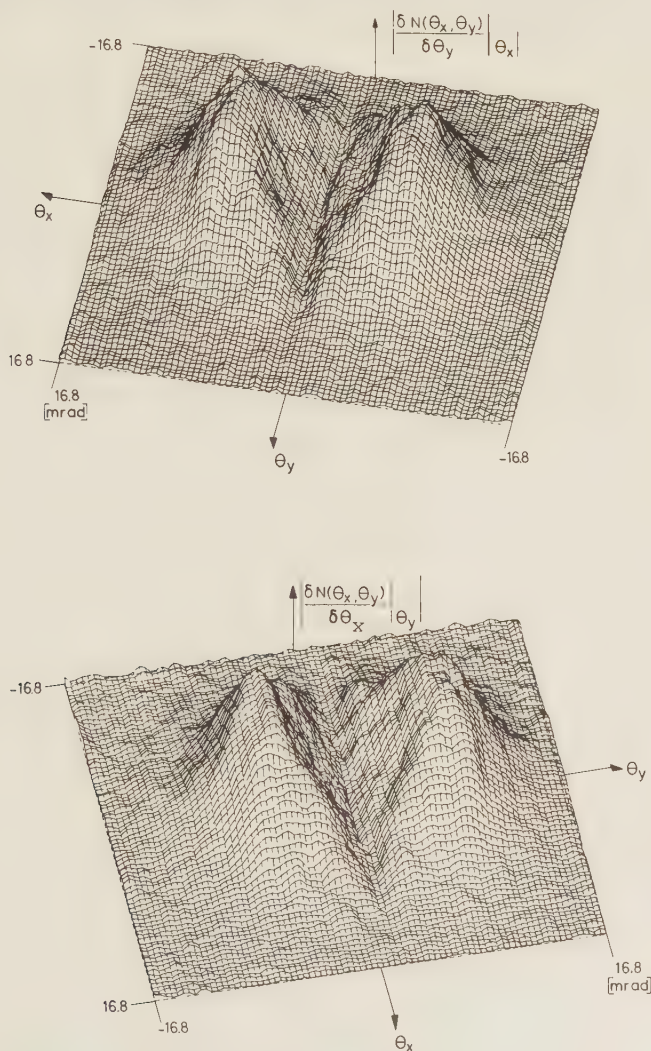


Figure 7.4 : Valeur absolue des dérivées partielles selon θ_y (a) et selon θ_x (b) calculées dans la distribution des corrélations angulaires mesurée dans le V_3Si . Pas du quadrillage : 0.4 mrad

Cette figure met en évidence une structure fine très importante. Soulignons que c'est la première fois que l'annihilation de positrons fournit une information aussi détaillée dans le V_3Si . On relèvera la similitude des deux fonctions (dont l'une est tournée de 90° de façon à se présenter dans une direction qui permette la comparaison). On notera en particulier la présence, dans chacune des figures de deux paliers dans les faces internes des bosses et aussi la transformation des crêtes qui vont vers les grands angles en s'élargissant, puis se creusent légèrement, faisant apparaître un léger vallon qui se propage parallèlement aux crêtes et finit même par se dédoubler aux grands angles.

Ce calcul de la dérivée est relativement grossier. En plus, il est assez sensible au bruit. Pour palier à cet inconvénient et pour pouvoir mettre plus précisément en évidence les structures que nous observons dans les dérivées partielles, nous avons calculé celles-ci à partir de polynômes ajustés sur une série de 4 points consécutifs. Le principe est le même que celui adopté par Samoilov et Weger (70) pour l'analyse de leur mesure unidimensionnelle. Dans notre cas, nous avons choisi les polynômes d'ordre 2 pour faire cette analyse. La raison de ce choix réside dans le fait que les polynômes d'ordre 3 donnent un résultat qui oscille facilement et c'est un calcul dangereux de ce point de vue; seule une analyse minutieuse des résultats obtenus permet de faire la part des structures observées. Pour une analyse de mesures bidimensionnelles, il faudrait une statistique exceptionnelle pour pouvoir appliquer cette procédure. Le calcul avec des polynômes d'ordre 2 est par contre extrêmement stable et peu affectué par le bruit. S'il a peut-être le désavantage d'atténuer les structures observées, il faut préciser que la statistique dont nous disposons nous a conduit à utiliser des histogrammes redondants et que la résolution du calcul des dérivées avec les polynômes d'ordre 2 est supérieure à celle de ces histogrammes. De plus, pour augmenter le rapport signal sur bruit, nous avons calculé les dérivées sur la somme de la distribution des angles positifs et négatifs. Le pas dans le calcul de la dérivée a été choisi de façon à obtenir 20 valeurs dans chaque $1/2$ zone de Brillouin (2.56 mrad). Ainsi plusieurs valeurs successives peuvent être obtenues à partir des même quatre valeurs de la distribution qui sont utilisées pour déterminer le polynôme. C'est seulement lorsque l'abscisse où l'on va calculer la dérivée ne se trouve plus située dans le domaine séparant les deux points intérieurs que l'on rejette le point de la distribution le plus éloigné pour en introduire un nouveau de façon à rétablir la situation. Une procédure de "moindres carrés" est utilisée pour ajuster une fonction quadratique entre ces quatre points expérimentaux et les coefficients de cette fonction sont utilisés pour évaluer la dérivée. Les résultats que l'on obtient sont présentés à la figure 7.5 pour les 4 valeurs particulières de p_y suivantes : 0, π/a , $2\pi/a$ et $3\pi/a$ où a est le paramètre de maille. Ces valeurs correspondent respectivement au centre de la 1ère zone de Brillouin, à la limite entre la première et la seconde zone, au centre de la seconde zone et à la limite entre la seconde et la troisième zone. Le résultat de ce calcul met en évidence de façon beaucoup plus claire la structure déjà observée à la figure 7.4. Il est en très bon accord avec les résultats obtenus par Berko et Mader (72) qui observent la même structure.

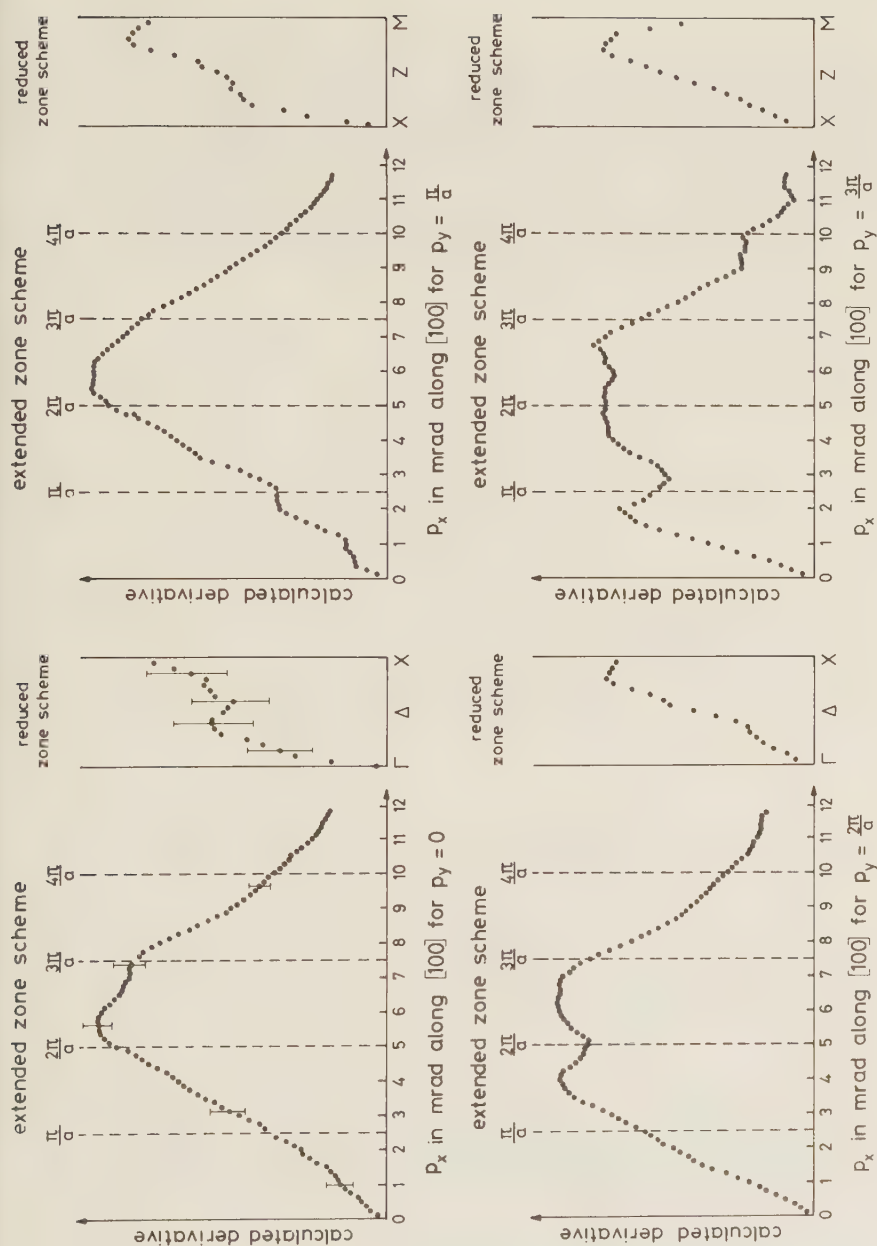


Figure 7.5 : Calcul de la dérivée de la distribution des corrélations angulaires du V_3Si par la méthode d'ajustage de polynômes d'ordre deux. Les coupes ont 1.2 mrad de large et sont centrées à $\theta_y = 0, \pi/a, 2\pi/a$ et $3\pi/a$. On montre également, pour chacune d'elles, la dérivée réduite dans la première zone de Brillouin

Cette structure se répartit sur plusieurs zones de Brillouin aussi est-il intéressant de la réduire dans la première zone. Pour illustrer cette procédure, considérons la distribution des corrélations angulaires schématisée à la figure 7.6-a. Cette distribution produit des pics dans sa dérivée dont le signe alterne avec la zone dans laquelle ils sont. On voit aisément que l'on peut réduire la structure de la dérivée de quatre zones dans deux zones par une symétrie miroir à $2\pi/a$ et en soustrayant les deux parties. La réduction dans la première zone de Brillouin s'obtient en effectuant les mêmes opérations autour de π/a .

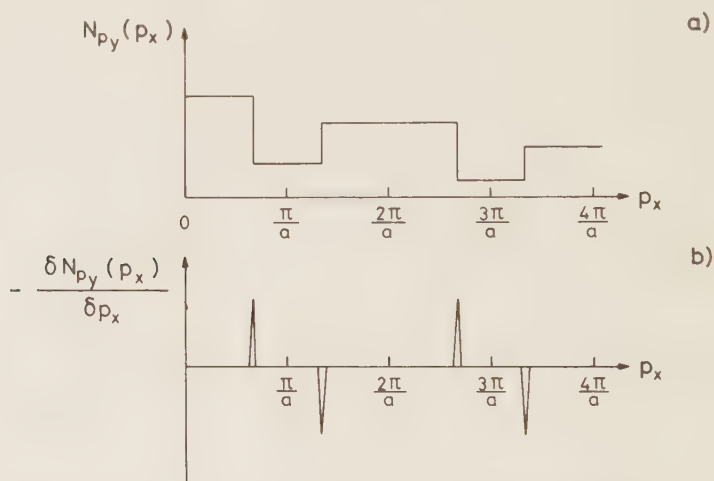


Figure 7.6 : Distribution hypothétique des corrélations angulaires (a) et de sa dérivée (b) imaginée afin d'illustrer la procédure de réduction des dérivées dans la première zone de Brillouin

Ce que donne une telle procédure est aussi reporté à la figure 7.5 dans le schéma des zones réduites.

Il est intéressant de comparer nos résultats avec ceux fournis par les mesures unidimensionnelles.

1. pic à $0.8\pi/a$: nous confirmons l'existence d'un pic très prononcé se situant à $0.8\pi/a$ dans le schéma des zones réduites. Nos résultats suggèrent de plus que ce pic provient essentiellement de la deuxième zone de Brillouin. En effet, la figure 7.5 montre qu'il est inexistant à $p_y = 0$, faible à $p_y = \pi/a$ et $2\pi/a$ et très prononcé à $p_y = 3\pi/a$.

2. pic à $0.4\pi/a$: là aussi notre mesure, tout comme les résultats unidimensionnels, met en évidence une structure dont l'amplitude est inférieure à la précédente. Nos mesures suggèrent en plus que ce pic a son origine dans la première zone de Brillouin, à $p_y = 0$ surtout. Il est encore marqué à $p_y = \pi/a$, mais avec une plus petite amplitude. Il n'apparaît pas dans la deuxième zone de Brillouin.

3. pic à $0.6\pi/a$: ce pic apparaît dans la mesure de Samoilov et Weger. Dans la mesure de Berko et Weger, ce pic semble être présent mais avec une faible intensité. Dans nos mesures, il n'apparaît pas. Ces observations suggèrent que ce pic provient d'une structure relativement faible qui recouvre plusieurs zones de Brillouin. Il est de ce fait trop petit pour pouvoir être mis en évidence dans ces coupes bidimensionnelles, tout du moins avec la statistique dont nous disposons, alors que, à cause de l'effet cumulatif dû à l'intégration supplémentaire effectuée, il apparaîtrait, semble-t-il, dans les mesures unidimensionnelles.

L'attribution de ces pics à telle ou telle bande a déjà été mentionnée dans le paragraphe 1, elle était basée sur le modèle des chaînes linéaires, dans l'approximation des bandes indépendantes. Nous ne voulons pas la reprendre ici. Nous confronterons nos résultats avec le calcul APW de van Kessel, Myron et Mueller (66, 67). Si l'on suppose que la structure de bande est semblable pour le Nb_3Sn et pour le V_3Si , ce que font les auteurs du calcul APW puisqu'ils comparent leurs résultats sur le Nb_3Sn avec des mesures effectuées sur V_3Si , on peut tenter une analyse comparative. Afin de simplifier la discussion, nous avons reproduit sur la figure 7.7 les résultats du calcul APW dans les deux plans de la zone de Brillouin qui nous occupent, à savoir la coupe à $p_y = 0$ (Γ) et la coupe à $p_y = \pi/a$ (X). Soulignons qu'à chaque point (p_x , p_y) dans la distribution d'impulsion des paires de photons ces deux plans interviennent simultanément, puisqu'ils sont superposés dans la direction p_z qui est la direction dans laquelle nous n'avons pas de résolution.

La comparaison des résultats du calcul APW et des structures que nous avons obtenues dans le schéma des zones réduites suggère les faits suivants :

1. Le pic que nous observons à $0.8\pi/a$ est probablement dû aux bandes 17, 18, 19 qui forment des ellipsoïdes centrés à M. Ces ellipsoïdes forment, comme le montre la figure 7.7, des surfaces de faible courbure qui peuvent, tout comme des portions de plans, induire un pic dans la dérivée, ce pic étant intense du fait que plusieurs bandes y contribuent. L'importance de ce pic à $p_y = 3\pi/a$ montre qu'il est dû à des états électroniques dont les fonctions d'ondes sont surtout développées dans les deuxième et troisième zones de Brillouin.

2. Le pic à $0.4\pi/a$ est plus difficile à expliquer de façon univoque. Une première possibilité consiste à supposer qu'il provient des bandes 19 et 20 qui donnent lieu à une poche d'électrons au point Γ . L'allure des bandes qui donnent lieu à cette portion de la surface de Fermi suggère qu'elle doit avoir une forte contribution à la densité d'états au niveau de Fermi. Une autre possibilité consiste à supposer que le pic que nous observons n'est pas en réalité un pic, mais la conséquence d'un creu (pic négatif) centré à $0.6\pi/a$. Celui-ci proviendrait du passage sous la surface de Fermi des bandes 19 et 20 à $0.6\pi/a$ le long de la ligne Δ . Cette interprétation, que nous ne pouvons pas exclure à priori, irait pourtant contre la présence d'un pic

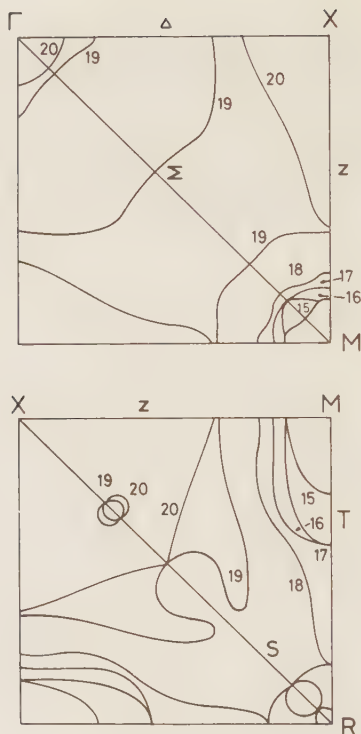


Figure 7.7 : Plan à $k_z = 0$ et $k_z = \pi/a$ dans la surface de Fermi du Nb_3Sn (d'après Van Kessel, Byron et Mueller (67))

positif à $0.6\pi/a$ observé dans la mesure unidimensionnelle de Samoilov et Weger. Seul un calcul de la densité de quantité de mouvement effectué à partir de la structure de bande APW pourrait apporter les éléments qui permettraient de choisir la bonne alternative.

Pour conclure, on voit que la mesure que nous avons effectuée sur le V_3Si est pour l'essentiel en bon accord avec les mesures précédentes et avec les calculs disponibles aujourd'hui. De plus, nos mesures fournissent d'intéressants renseignements sur la localisation dans l'espace $\mathbf{p}$ des structures vues dans la dérivée du spectre expérimental. Cette observation doit pouvoir être reliée à la localisation des fonctions d'ondes électroniques.

CONCLUSIONS

Nous avons développé une méthode originale destinée à mesurer la radiation d'annihilation du positron dans les solides. Les détecteurs bidimensionnels que nous avons utilisés sont des chambres proportionnelles multifils de haute densité. Ils sont asservis par un ordinateur qui gère la prise de donnée et sélectionne les événements.

Les caractéristiques de cette nouvelle méthode ont été mises en évidence par la mesure de la distribution des corrélations angulaires dans deux matériaux bien connus : l'aluminium et le cuivre. Nous avons démontré que les mesures effectuées mettent clairement en évidence la topologie de la surface de Fermi. Dans le cuivre notamment, les pics sont nettement observés et leur rayon correspond tout à fait à celui établi par l'effet de Haas van Alphen.

Nous avons démontré la sensibilité de cette méthode en mettant en évidence dans le cuivre des composantes de grande quantité de mouvement.

La mesure que nous avons faite dans le composé intermétallique V_3Si a été discutée dans le schéma des zones réduites. Nous avons montré que cette mesure est en bon accord avec les mesures unidimensionnelles faites jusqu'à ce jour. Le caractère bidimensionnel de notre mesure fournit des renseignements nouveaux sur la position des pics observés dans la dérivée de la distribution mesurée. Nous avons comparé nos résultats avec la surface de Fermi compliquée obtenue par la méthode APW et avons souligné la concordance de ces deux approches.

Notre travail a mis en évidence la nécessité de disposer de calculs de bandes précis afin de pouvoir, à partir des fonctions d'ondes électroniques, reconstruire les distributions de densité d'impulsion dans l'espace p . Nous sommes convaincus que de cette manière une interaction constructive entre expérience et théorie pourra contribuer efficacement à l'étude des propriétés électroniques des métaux et des composés intermétalliques par annihilation. Certains problèmes subsisteront néanmoins et de leur maîtrise dépendront la qualité des résultats obtenus : l'effet des corrélations positron-électrons et électrons-électrons, la non-uniformité de la distribution spatiale du positron (à l'échelle microscopique) dans les composés intermétalliques en sont les exemples principaux.

Nous espérons avoir doté le Département de Physique de la Matière Condensée de l'Université de Genève d'un instrument utile qui s'intégrera harmonieusement dans son effort de recherche et d'enseignement.

Alfred A. Manuel
25 juillet 1978

REMERCIEMENTS

Paganini, en parlant des virtuoses :

"il faut être doué, travailleur et avoir de bons professeurs".

Il manque à cette définition l'exigence envers soi-même. Une exigence qui libère totalement les deux premiers qualificatifs ! Reste le troisième, le principal pour mon travail de thèse.

Alors merci très sincèrement ...

Merci à vous Professeur Peter et Professeur Fischer. Vos conseils, votre intérêt, votre sagesse et votre dynamisme furent les éléments primordiaux indispensables à ce travail.

Merci à toi, Alan Jeavons. Tu m'as ouvert et initié à ce monde fascinant de la technologie en physique nucléaire. Que d'heures merveilleusement difficiles devant des amplificateurs récalcitrants et devant un software pas si "soft" à dompter, je te dois... Des souvenirs encreés très profondément.

Merci à vous Professeur Weger. Vous m'avez ouvert de nombreux horizons lors de vos passages à Genève et notamment en automne 1974, je vous en suis reconnaissant.

Merci à toi, Kurt Kull. Sans tes mains agiles et ton ingéniosité, jamais des détecteurs aussi bien adaptés à leur tâche n'auraient vu le jour. Et sans eux ...

Merci à vous Dr. Walker. Vous m'avez introduit dans le monde méticuleux de la cristallogénèse et de la métallurgie, où l'erreur de jugement signifie temps perdu !

Merci à toi S. Samoilov. J'ai profité de tes fabuleuses pointes de travail. En plus : tu m'as tout appris de la politique scientifique et de la science de l'interprétation : $A + B$ égale souvent $B + A$!

Merci à vous, Professeur Wanner. NETW(0)RK est une petite merveille de FORTRAN, promise à un usage aussi utile qu'intensif. Elle a beaucoup contribué à mettre en valeur mes mesures.

Merci à vous C. Parkmann, J.C. Pinnasseau et J.L. Bretin. Grâce à vous, les projets sont devenus réalité... et la C.I.I. a allongé son bras jusqu'au bord de l'Arve.

Merci à toi Tin. Si la CII, le PL-11 et SMO n'ont (presque) plus de secrets pour moi, c'est grâce à ta disponibilité et peut-être plus encore grâce à ton humour et à ta bonne humeur ! Merci T. Streater.

Merci à toi Arthur. Ton séjour au CERN aura certainement été un haut moment dans ta carrière ! Il a contribué à débloquent mon travail, merci. Et aussi pour le travail de tous les jours, anonyme et efficace : celui dont on parle le moins est souvent le plus utile.

Merci à toi Rémy Sachot : ta connaissance des chambres à fils et de l'électronique rapide m'a beaucoup profité.

Je tiens aussi à remercier les responsables du CERN qui ont toujours soutenu la collaboration du DPMC avec le DD. Je les remercie aussi d'avoir si largement mis à ma disposition la CII-10070 sur laquelle a été effectué, mis à part les travaux de plotter, la totalité des calculs numériques et le traitement des données dont ce travail fait l'objet.

Ma reconnaissance va aussi au personnel de l'Atelier de l'Ecole de Physique pour le soin apporté à l'exécution de différents travaux et à Mme Tessier pour avoir tapé ce texte.

Cette étude a bénéficié du soutien matériel du Fonds National Suisse de la Recherche Scientifique.

REFERENCES

1. P.Kubica, A.T.Stewart : Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 852
2. S.M.Kim, A.T.Stewart, J.P.Carbotte : Phys. Rev. Lett. 18
(1967) 385
3. GE Lee-Withing : Phys. Rev. 97 (1955) 1557
4. J.P.Carbotte, H.L.Arora : Canadian J. of Phys. 45 (1967) 387
5. A.Perkins, J.P.Carbotte : Phys.Rev. B1 (1970) 101
6. A.B.Migdal : Sov. Phys. JEPT 7 (1958) 996
7. P.A.M.Dirac : Proc. Camb. Phil. Soc. math. phys. Sci.
26 (1930) 361
8. W.R.Johnson, D.J.Buss, C.O.Carroll : Phys. Rev. 135 (1964)
A 1232
9. A.Ore, J.L.Powell : Phys. Rev. 75 (1949) 1696
10. R.N.West : Adv. in Physics 22 (1973) 263
11. P.E.Mijnarends : Phys. Rev. 160 (1967) 512, and Phys. Rev.
178 (1969) 622
12. S.Kahana : Phys.Rev. 129 (1963) 1622
13. J.J.Donaghy, A.T.Stewart : Phys. Rev. 164 (1967) 396
14. A.P.Jeavons, D.W.Townsend, N.L.Ford, K.Kull, A.A.Manuel,
Ø.Fischer, M.Peter : IEEE Trans. on Nucl. Sci. 25 (1978) 164
A.P.Jeavons, C.Cate : IEEE Trans. on Nucl. Sci. 23 (1976)
640
15. A.P.Jeavons, G.Charpak, R.J.Stubbs : Nucl. Inst. and Meth.
124 (1975) 491
16. G.Charpak, D.Rahm, H.Steiner : Nucl. Inst. and Meth.
80 (1970) 13
17. D.H.Wilkinson : Ionization chambers and counters (Cambridge
University Press) 1950; and P.Rice-Evans : spark, streamer,
proportional and drift chambers (Richelieu Press, London) 1973
18. D.M.Lee, S.E.Sobottka, H.A.Thiessen, Nucl. Inst. and Meth.
104 (1972) 179
19. R.D.Russell : PL-11 : a programming language for the DEC
PDP-11 Computer, edited by T.C.Streater, CERN : 74-24 (1974)
20. A.Junod, J.L.Staudenmann, J.Muller, P.Spitzli : J. of Low.
Temperature Phys. 5 (1971) 25
21. A.Paoli (1974) : Communication privée
22. J.L.Staudenmann, P.Coopens, J.Muller : Sol. St. Com.
19 (1976) 29
J.L.Staudenmann, Thèse No 1735, Université de Genève (1976)

23. A.T.Stewart, J.B.Shand, S.M.Kim : Proc. Phys. Soc. 88 (1966) 1001
24. R.J.Douglas, A.T.Stewart : paper H 14, 4th International Conference on positron Annihilation, Helsingör, Denmark, august 1976 (unpublished)
25. V.Heine : Proc. Roy. Soc. A 240 (1957) 340
26. V.Heine : Proc. Roy. Soc. A 240 (1957) 354
27. V.Heine : Proc. Roy. Soc. A 240 (1957) 361
28. W.A.Harrison : Phys. Rev. 118 (1960) 1182, 1190
29. N.W.Hashcroft : Phil. Mag. 8 (1963) 2055
30. B.Segall : Phys. Rev. 124/6 (1961) 1797
31. Y.Kubo, S.Wakoh, J.Yamashita : J. of Phys. Soc. of Japan 41 (76) 830
32. T.Okada, H.Sekizawa, N.Shiotani : J. of Phys. Soc. of Japan 41 (1976) 836
33. J.Mader, S.Berko, H.Krakauer, A. Bansil : Phys. Rev. lett. 37 (1976) 1232
34. S.Berko, M.Haghighoie, J.J.Mader : Phys. Rev. lett. A 63 (1977) 355
35. F.James, M.Root : CERN, internal. report 75/20
36. J.A. Nelder, M.Read : Comput. J. 7 (1965) 308
37. R.Fletcher : Comput. J. 13 (1970) 317
38. G.A.Burdick : Phys. Rev. 129 (1963) 138
39. B.Segall : Phys. Rev. 125 (1962) 109
40. C.Y.Fong, J.P.Walter, M.L.Cohen : PR B11 (1975) 2759
41. F.Garcia Moliner à Phil. Mag. 3 (1958) 207
42. D.J. Roaf : Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A 250 (1962) 135
43. M.R.Halse : Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A 269 (1969) 507
44. B.Bosacchi, P.Franzoni : J. Phys. F 6 (1976) L99
45. S.Berko, J.Mader : Appl. Physics 5 (1975) 287
46. K.Fujiwara, O. Sueoka : J. Phys. Soc. Japan 21 (1966) 1947
47. A.S. Joseph, A.C.Thersen, E.Gertner, L.E.Valby : Phys. Rev. 148 (1966) 569
48. B.Rozenfeld, S.Chabik, J.Pajak, K.Jeric, W.Wierzchowski : Acta Phys. Polon. A 44 (1973) 21
49. S.Berko, J.S.Plaskett : Phys. Rev. 112 (1958) 1877
50. E.M.D.Senicki, E.H.Becker, A.G.Gould, R.N.West, B.G.Hogg : J. Phys. Chem. Solids 34 (1973) 673

51. E.M.D.Senicki, E.H.Becker, A.G.Gould, B.G.Hogg : Phys. Rev. lett. 41 A (1972) 293
52. D.R.Hartree : Proc. Roy. Soc. A 141 (1933) 282
53. C.Froese : Proc. Cambridge Phil. Soc. 53 (1957) 206
54. J.Melngailis : Phys. Rev. lett. B 2 (1970) 563
55. M.Weger, I.B.Goldberg : Sol. St. Phys. 28 (1973) 1
56. A.M.Clogston, V.Jaccarino : Phys. Rev. lett. 121 (1961) 1357
57. M.Weger : J. Phys. Chem. Sol. 36 (1964) 175
58. J.Labbé, J.Friedel : J. Physique 27 (1966) 153
59. J.Labbé, J.Friedel : J.Physique 27 (1966) 303
60. J.Labbé, J.Friedel : Phys. Rev. lett. 158 (1967) 647
61. I.B.Goldberg, M.Weger : J. Phys. C 3 (1972) 223
62. J.Buttet, D.Lauger : Phys. Rev. lett. B 9 (1974) 4643
63. G.Barak, I.B.Goldberg, M.Weger : J. Phys. Chem. Sol. 36 (1975) 847
64. I.B. Goldberg : J. Phys. C 8 (1975) 1159
65. L.F.Mattheiss : Phys. Rev. lett. 138 A (1965) 112
66. A.T.Van Kessel, H.W.Myron, F.M.Mueller, à paraître
67. A.T.Van Kessel, H.W.Myron, F.M.Mueller, contribution à la 15e conférence sur la physique des basses températures, Grenoble, août 1978, à paraître dans Journal de Physique.
68. S.Berko, M.Weger : Phys. Rev. lett. 24 (1970) 55
69. S.Berko, M.Weger : IBM Conférence, Wildbad (1971), edited by F.Hermann, Plenum Press
70. S.Samoilov, M.Weger : Sol. St.Com. 24 (1977) 821
71. S.Samoilov, J.Askenzi, M.Weger, I.B.Goldberg, à paraître dans Journal de Physique.
72. S.Berko, J.Mader : Appl. Phys. 5 (1975) 287

